Université de Franche-Comté

École Doctorale Louis Pasteur

Thèse de Doctorat

Spécialité Chimie

présentée par

Mehdi Benmosbah

Spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d'un ensemble de compteurs proportionnels

Jury :

Président : François Vernotte, Professeur, Université de Franche-Comté, Besançon
Rapporteur : Abdelmjid Nourreddine, Professeur, Université Louis Pasteur, Strasbourg
Rapporteur : Didier Paul, Expert Radioprotection et Sûreté Nucléaire, CEA Cadarache
Examinateurs : Bruno Asselineau, Ingénieur, LMDN, IRSN Cadarache
Philippe Crovisier, Ingénieur, SPR, CEA Valduc
Francisco Fernandez, Professeur, Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid
Michel Fromm, Professeur, LMN-AC, Université de Franche-Comté
Jean-Emmanuel Groetz, Maître de Conférences, LMN-AC, Université de Franche-Comté

À mes chers parents et à mes soeurs adorées et à toute ma famille à qui j'exprime tout mon amour

Remerciements

J'exprime mes vifs remerciements, ma profonde gratitude et ma reconnaissance à mon encadrant Monsieur Jean-Emmanuel Groetz, qui a dirigé cette thèse dans la continuité de mon stage de D.E.A. La pleine confiance qu'il m'a accordée dès le début m'a permis de progresser régulièrement. Je voudrais aussi le remercier pour le temps qu'il m'a consacré et la patience avec laquelle il a accompagné mon travail tout le long de cette thèse. D'ailleurs, les conseils qu'il m'a prodigués pendant la recherche bibliographique, la rédaction, l'exploitation des résultats et aussi lors du travail sur les présentations orales, ont toujours été clairs et appropriés, me facilitant ainsi la tâche et me permettant d'aboutir à la production de ce manuscrit de thèse. Je remercie spécialement Monsieur Michel Fromm, directeur du LMN-AC, d'avoir accepté de m'accueillir au laboratoire et pour m'avoir préparé les meilleures conditions de travail.

Mes plus sincères remerciements et ma gratitude vont également à Monsieur Philippe Croviser, du SPR du CEA Valduc qui s'est accordé parfaitement pour mon suivi et mon encadrement tout au long des travaux de thèse. Je le remercie pour le soutien qu'il m'a apporté pour le projet de recherche sur le ROSPEC, et également pour m'avoir permis de participer activement au Groupe de Travail ROSPEC. Son soutien et ses encouragements m'ont été très utiles. J'aimerais dire ma reconnaissance et exprimer mes remerciements les plus sincères pour tous les membres du Groupe de Travail, à savoir Messieurs Laurent Van-Rykeghem, Bruno Asselineau et Gérard Pelcot du Laboratoire de Métrologie des Neutrons (IRSN Cadarache), Hubert Truffert et Alain Cadiou de l'Institut AREVA de la Hague. Le Groupe de Travail m'a donné les moyens pour entreprendre la travail de thèse sur la ROSPEC dans les meilleures conditions possibles. J'ai bénéficié, par ailleurs, des conseils, des remarques et des échanges intéressants de tous les membres, preuve de la confiance qu'ils m'ont accordée tout au long de cette thèse.

Je remercie Messieurs les rapporteurs : Didier Paul et Abdelmjid Nourredine pour la diligence et l'attention avec lesquelles ils ont lu mon manuscrit et l'intérêt qu'ils ont accordé à mon travail. Mes remerciements vont aussi aux autres membres du jury qui ont accepté de juger ce travail et en particulier Monsieur Francisco Fernandez qui m'a éclairé par ses remarques constructives et ses conseils avisés sur la déconvolution spectrométrique.

J'adresse, pareillement, mes remerciements tous les membres du LMN-AC pour leur sympathie et leur bonne humeur mais aussi pour leurs aides et encouragements. J'ai une pensée particulière et émue pour tous ceux et celles avec qui j'ai partage des moments conviviaux en espérant ne pas en oublier : Omar, Zayd, Sylvie, Laetitia, Christelle, Sarah, Franck, Jean-Baptiste, Christophe, Catalina, François, Nicolas, Bruno, Manuel, Mironel, Eric. Un merci particulier pour Omar pour son aide le jour de la soutenance.

Je n'oublierai pas Jérôme avec qui j'ai fait quelques années d'université et qui a eu la gentillesse de répondre présent à ma soutenance et lui exprime mes encouragements pour sa thèse. Je pense également à Antoine pour tous les moments sympathiques passés ensemble lorsqu'il était à Besançon et je le remercie pour son soutien et sa bonne humeur. Je tiens à adresser des remerciements particuliers à mon collègue arbitre et ami Alain Chautard pour sa présence à ma soutenance qui m'a fait beaucoup plaisir. Je voudrais exprimer mes pensées amicales à Rodolphe et Linh qui ont toujours compté dans ma vie d'étudiant et de doctorant.

Ma reconnaissance et mon affection totales vont à ma chère mère Mouldia et mon père adoré Mosbah pour tout leur soutien, leur présence et leurs encouragements durant la thèse et les années universitaires de façon générale. Ils ont toujours su dire le bon mot au bon moment et je ne les en remercierai jamais assez. Mes soeurs Amel, Mona et Maroua ont toujours été à mes côtés durant cette période et apporter la note de joie et de bonne humeur nécessaire. Je voudrais leur dire toute ma tendresse à leur égard. Mes pensées vont à Selim qui a toujours été proche de moi et avec qui j'entretiens des relations fraternelles. Je dédicace cette thèse à toute ma famille en Tunisie en particulier à ma grand-mère Fatma à laquelle je pense très fort, à la famille Hamaïda à la Marsa, à mes tantes Fatoum et Saida et toutes leurs familles, à mon oncle Houcine et sa famille, à mon oncle Mohamed et toute sa famille et à toutes les cousines et cousins. Je voudrais dédier cette thèse à mon cher oncle Ahmed qui a eu la gentillesse de faire un long trajet pour répondre présent le jour J. J'aimerais enfin dédier cette thèse à la mémoire de mes grands-parents disparus Selma, Mohamed et Romdhane.

Table des matières

Résumé **vi**

Abstract **viii**

Introduction **1**

1 Détection des neutrons dans les compteurs proportionnels gazeux **5**

1.1 Domaines d'application de la spectrométrie neutronique 5

1.2 Méthodes employées pour la détection des neutrons 6

1.3 Classification des neutrons 6

1.3.1 Interaction des neutrons avec la matière 7

1.3.2 Sections efficaces d'interaction 7

1.4 Les sources neutroniques 14

1.4.1 Les sources de fission spontanée 15

1.4.2 Les radioisotopes sources (α,n) 18

1.4.3 Les sources photo-neutroniques 20

1.4.4 Production de neutrons par d'autres moyens 21

1.5 Les méthodes et instruments existants pour la détection des neutrons . . . 22

1.5.1 Le compteur Geiger-Müller 22

1.5.2 Les détecteurs à scintillation liquide et solide 23

1.5.3 Les sphères de Bonner 23

1.6 Les compteurs proportionnels à remplissage gazeux 24

1.6.1 La théorie des compteurs proportionnels 24

1.6.2 Le choix de la géométrie 28

1.7 Méthode Monte Carlo pour les calculs neutroniques 35

1.7.1 Généralités 35

1.7.2 Application de la méthode de Monte-Carlo aux problèmes de neutronique 35

1.7.3 Codes Monte Carlo utilisés 40

2 Modélisation du ROSPEC en champs neutroniques standards 45
2.1 L'instrument ROSPEC . . . 45
2.1.1 Généralités . . . 45
2.1.2 Description du ROSPEC . . . 46
2.1.3 Choix des compteurs. Caractéristiques. . . . 49
2.1.4 Étalonnage et intercomparaisons passés . . . 52
2.1.5 Problématique . . . 59
2.2 Méthodes de modélisation . . . 61
2.2.1 Choix du modèle pour un compteur proportionnel gazeux . . . 61
2.2.2 Quantités spectroscopiques et dosimétriques calculées . . . 61
2.2.3 Protocole de mesure et protocole de modélisation adoptés . . . 63
2.2.4 Modélisation de la rotation du ROSPEC . . . 65
2.2.5 Détermination des perturbations mutuelles entre les détecteurs du ROSPEC . . . 69
2.3 Résultats . . . 70
2.3.1 Influence de la rotation . . . 70
2.3.2 Influences mutuelles entre les détecteurs . . . 73
2.4 Bilan de la modélisation . . . 78

3 Fonctions de réponse des compteurs proportionnels du ROSPEC 79
3.1 Principe de détection mis en jeu dans les compteurs proportionnels à protons de recul . . . 79
3.1.1 Particularités des compteurs proportionnels à protons de recul . . . 79
3.1.2 Mécanismes de fonctionnement des compteurs proportionnels sphériques gazeux . . . 81
3.1.3 Efficacité des compteurs proportionnels à protons de recul . . . 81
3.1.4 Limitations du domaine d'énergie et résolution énergétique . . . 82
3.1.5 Étalonnage énergétique des compteurs . . . 87
3.1.6 Phénomènes perturbant la détection . . . 89
3.2 Effet de paroi . . . 92
3.2.1 Définition . . . 92
3.2.2 Analyse générale de l'effet de paroi . . . 92
3.2.3 Application de l'algorithme de Snidow à la géométrie sphérique . . . 94
3.2.4 Résultats . . . 99
3.2.5 Bilan des résultats . . . 106
3.3 Le phénomène de downscattering . . . 107
3.3.1 Définition . . . 107
3.3.2 Prise en compte . . . 107

3.4 Champ électrique et multiplication gazeuse 108
3.4.1 Particularité de l'amplification gazeuse dans un compteur proportionnel sphérique 108
3.4.2 Ionisation dans le gaz : la théorie de Townsend 108
3.5 Calcul du champ électrique dans les compteurs proportionnels sphériques . 112
3.5.1 Méthode des éléments finis 113
3.5.2 Résolution de l'équation de Laplace 115
3.5.3 Coefficient de multiplication gazeuse et application à la simulation Monte Carlo 118
3.6 Résultats 123
3.6.1 Compteur SP2-1 123
3.6.2 Compteur SP2-4 124
3.6.3 Compteur SP2-10 126
3.6.4 Bilan de la prise en compte des effets de champ électrique 126

4 Amélioration de la déconvolution spectrométrique du ROSPEC 129
4.1 Généralités sur la déconvolution 129
4.1.1 Définition 129
4.1.2 Méthodes mathématiques utilisées pour les problèmes de déconvolution 132
4.2 Le code de déconvolution SPEC4 140
4.2.1 Généralités sur le code de déconvolution SPEC4 140
4.2.2 Problématique de la déconvolution du ROSPEC 146
4.3 Le code de déconvolution alternatif MAXED 148
4.3.1 Présentation du code MAXED 148
4.3.2 Utilisation pratique de MAXED 148
4.4 Intercomparaison SPEC4/MAXED 156
4.4.1 Démarche suivie 156
4.4.2 Déconvolution des données spectrales avec SPEC4 156
4.4.3 Déconvolution des données spectrales avec MAXED 157
4.4.4 Résultats 158
4.5 Bilan 168
4.6 Optimisation de l'utilisation du code MAXED 170
4.6.1 Amélioration du calcul des matrices de réponse 170
4.6.2 Détermination des matrices de réponse pour les détecteurs des autres ROSPEC 170
4.6.3 Importance du spectre de départ dans la déconvolution 175
4.6.4 Résultats 176

4.6.5 Bilan 184

Conclusion générale **187**

Résumé

L'ensemble spectrométrique dénommé ROSPEC, est composé de six compteurs proportionnels gazeux montés sur une plateforme rotative, a été conçu pour mesurer le spectre de fluence neutronique les données dosimétriques associées.

Une campagne d'intercomparaison avec des sources neutroniques ISO a été réalisée en 2003 et a mis en exergue la nécessité d'étudier les effets de la rotation et de déterminer les influences éventuelles entre les différents compteurs proportionnels. Grâce à la simulation Monte Carlo (code MCNP), nous avons montré que la rotation n'avait pas d'incidence sur les spectres mesurés mais qu'en revanche le détecteur sensible aux neutrons thermiques était particulièrement perturbé par son voisinage immédiat.

Nous avons calculé les réponses des compteurs proportionnels hydrogénés en tenant compte de phénomènes internes influençant la détection, tels que l'effet de paroi et l'effet de la variation de la multiplication gazeuse au sein du milieu détecteur. L'étude de l'effet de paroi, via le calcul des spectres de protons de recul, a été validée par le modèle analytique de Snidow. Nous avons déterminé les lignes de champ électrique dans les compteurs en recourant à la méthode des éléments finis. La prise en compte de l'effet de paroi et du champ électrique nous ont permis de restituer avec une grande précision la réponse expérimentale et d'écrire les matrices de réponse des détecteurs.

Les mesures ont mis en évidence des problèmes mathématiques liés à la déconvolution (notamment des valeurs de fluence négative). Pour remédier à ce problème, nous avons proposé l'utilisation du code MAXED qui s'appuie sur le principe d'entropie maximum. La comparaison de ce code avec le code existant SPEC4 a été réalisée. Nous avons montré que MAXED exhibait des performances de déconvolution améliorées dans certaines conditions. L'utilisateur doit en effet injecter dans la boucle de déconvolution un spectre de départ possédant des informations physiques telles que la présence de résonances ou anti-résonances ou l'aspect global du spectre de neutrons incidents.

Abstract

The Rotating Spectrometer ROSPEC is made of six gaseous spherical proportionnal counters and was designed to measure the neutron fluence spectrum and provide related dosimetric data.

A comparative survey with this spectrometer was carried out in 2003 on ISO neutron sources. It put forward the need for studying the effects of device rotation and for determining possible influences between the counters. By means of Monte Carlo calculations, we have shown that the rotation did not affect the measured neutron spectra but that the counter sensitive to the thermal neutrons was strongly disturbed in its immediate vicinity.

The hydrogenated proportional couters' responses have been calculated by taking into account phenomena influencing detection such as the wall effect and the effect of the variation of the gaseous multiplication in the detector medium. The wall effect was studied by validating the calculated recoil proton spectra with the analytical model of Snidow. The electric field lines were determined thanks to the finite element method. Thus, while taking into account both studied phenomena, we were able to obtain an accurate estimate for the experimental response.

Measurements highlighted mathematical disfonctions related to the unfolding (e.g. negative fluence values). To solve this problem, we proposed using the MAXED code which based on the maximum entropy principle. It was compared with the existing code SPEC4. We have concluded that MAXED provided better unfolding results if the user provides it with sufficiant physical information (such as the presence of resonances) through the default spectrum.

Introduction

Les besoins croissants de diagnostic des rayonnements ionisants, en particulier des neutrons, ont accéléré la mise au point d'outils d'analyse et de détection de plus en plus performants. La multiplication des applications neutroniques dans le génie atomique civil et militaire a poussé les laboratoires et les industries du domaine électro-nucléaire à faire appel à une nouvelle génération de spectromètres neutroniques adaptés aux problématiques rencontrées.

Le spectromètre multi-détecteurs ROSPEC (ROtating SPECtrometer : Spectromètre Rotatif) est un outil qui a été conçu par Bubble Technologies & Industries (Canada) pour répondre à ces nouvelles problématiques. Cet appareil permet de couvrir un large domaine d'énergie des neutrons avec une résolution inédite jusqu'alors. Il en existe une vingtaine dans le monde. En France, quatre organismes possèdent chacun un exemplaire du ROSPEC, à savoir : Le Service de Protection contre les Rayonnements du C.E.A. Valduc (Côte d'Or), Le Service de Protection contre Les Rayonnements de la COGEMA La Hague, le Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons de L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (Cadarache) et le Service de Protection contre les Rayonnements des Armées. Les organismes pré-cités, associés au Laboratoire de Microanalyses Nucléaires Alain Chambaudet de L'Université de Franche-Comté, ont décidé de créer un Groupe de Travail afin de fédérer les expériences d'utilisation des quatre ROSPEC et de confronter leurs performances. Un des objectifs de ce Groupe de Travail est de faire remonter de façon plus efficace ses revendications au constructeur. Le Groupe de Travail a programmé deux campagnes d'intercomparaison afin de procéder à des évaluations pertinentes des capacités des appareils, l'objectif étant de prendre les décisions adéquates quant améliorations éventuelles selon les résultats recueillis.

Les principaux axes du travail de la thèse ont été définis dans le cadre de ce Groupe de Travail. L'apport de ce travail de recherche est essentiellement théorique et s'articule

autour de la modélisation de l'appareil et de la compréhension des mécanismes de détection qu'il utilise. Nous nous attacherons à apporter des éléments de réponse aux problématiques soulevées lors des essais d'intercomparaisons réalisées par le Groupe de Travail.

L'état des lieux sur la détection des neutrons et le mode de fonctionnement des compteurs proportionnels gazeux est suivi par quelques notions sur la méthode de Monte Carlo appliquée au transport de particules.

Le ROSPEC a plusieurs caractéristiques qui le distinguent des autres spectromètres, à savoir, le large domaine d'énergie couvert par ses six compteurs proportionnels et la possibilité offerte à l'expérimentateur de le mettre en rotation à vitesse constante lors des mesures. De fait, la première phase de notre étude va consister à modéliser l'effet de la rotation de l'appareil sur les mesures spectrales des différents détecteurs qui le composent. Nous nous sommes intéressés à l'aspect "multi-détecteurs" du ROSPEC et avons voulu savoir s'il existait des perturbations entre les différents détecteurs du fait de leur proximité.

À des fins de caractérisation plus précise des compteurs hydrogénés du ROSPEC, essentielle en particulier pour la déconvolution de leurs données spectrales, il est apparu nécessaire de calculer et valider leurs fonctions de réponse. La littérature montre que plusieurs phénomènes liés au fonctionnement interne de ces détecteurs modifient de façon significative les distributions d'impulsions collectées en leur sein. L'étude de la première perturbation, à savoir l'effet de paroi, est accomplie en utilisant conjointement le modèle analytique de *Snidow* et le code de transport de particules chargées MCNPX. La collecte des impulsions est perturbée par un deuxième phénomène lié à la présence d'un fort champ électrique : l'avalanche électronique provoquée par la multiplication gazeuse au sein du milieu détecteur. Pour l'appréhender, nous avons fait appel à la méthode des éléments finis pour déterminer de façon rigoureuse les valeurs du champ électrique dans un premier temps. La théorie de Townsend permet ensuite de remonter aux variations des coefficients de multiplication gazeuse à partir des valeurs de champ électrique. La correction de la fonction de réponse est réalisée en combinant de façon appropriée les informations de multiplication gazeuse et le code de transport MCNPX.

Les mesures faites au cours de diverses campagnes d'intercomparaison ont mis en exergue un besoin d'optimisation du processus de déconvolution. Les problèmes qui ont été mis évidence avec le code pré-installé sur l'instrument, dénommé SPEC4 (apparition de fluences spectrales négatives notamment) sont vraisemblablement d'ordre mathématique. Par conséquent, nous avons fait le choix de faire appel à un code alternatif dénommé MAXED. Il se base sur la méthode du maximum d'entropie dont le fondement mathéma-

tique se situe dans la théorie bayésienne de l'information. Nous accomplissons une étude comparative des performances de déconvolution des deux codes pré-cités dans le but d'apporter des éléments contribuant à l'amélioration du traitement des données mesurées.

Chapitre 1

Détection des neutrons dans les compteurs proportionnels gazeux

1.1 Domaines d'application de la spectrométrie neutronique

La spectrométrie neutronique a vu son développement s'accélérer dans la dernière décennie. De fait, de nombreux instruments ont été mis au point pour répondre aux besoins des phycisiens. Les domaines d'application de la spectrométrie neutronique [1] sont :

- la caractérisation des matériaux *via* la diffusion des neutrons, la diffractométrie, la radiographie et la tomographie ;
- la dosimétrie des neutrons qui couvre la protection du personnel exposé aux radiations mais aussi la planification et l'application de traitement de radiothérapie ;
- la recherche fondamentale, notamment l'étude des sections efficaces de réactions nucléaires, de la matière sombre, des noyaux exotiques, des faisceaux de neutrons et de la physique spatiale ;
- le traitement de matériaux nucléaires spéciaux : cela inclut la mise au point et le contrôle d'armes nucléaires et la sécurisation d'installations d'irradiation ;
- la fusion : la spectrométrie fournit des outils de diagnostics performants pour la communauté des spécialistes de la fusion [2] [3]. La distribution et le taux d'émission des neutrons permettent de remonter respectivement au taux de réaction et

à la distribution spatiale du plasma. De plus, la détermination précise de la forme spectrale à 14,1 MeV aide à tirer des informations sur la température des ions du plasma et sur le degré d'incorporation des produits de réaction dans celui-ci.
- la fission : la spectrométrie neutronique fournit les outils nécessaires à la conception et au contrôle des réacteurs. Typiquement, les détecteurs sont nécessaires pour caractériser la distribution spatiale et le flux des neutrons dans le coeur du réacteur.

1.2 Méthodes employées pour la détection des neutrons

Les méthodes mises en œuvre pour la détection des neutrons sont nombreuses et les phénomènes physiques associés sont variés :

- Mesure de l'énergie des particules chargées (en général des protons) mises en mouvement suite à la diffusion élastique du neutron dans les milieux gazeux (hydrogénés ou majoritairement hydrogénés) ou dans les milieux liquides ou solide (scintillation liquide ou solide). C'est la méthode dite par "protons de recul".
- Détection des particules générées suite à des réactions nucléaires provoquées par les neutrons.
- Mesure de l'énergie cinétique des neutrons par les méthodes dites de temps de vol.
- Méthodes basées sur la diffraction des neutrons.
- Méthodes dites à seuil où l'énergie minimale du neutron est déduite par l'apparition d'un effet provoqué par celui-ci, tel que la radioactivité, l'émission d'un photon γ.
- Méthodes où la distribution énergétique des neutrons est déterminée par déconvolution des données spectrales des différents détecteurs caractérisés par leurs fonctions de réponse.

Ce sont la méthode dite par proton de recul et la méthode de détection des neutrons thermiques et épithermiques *via* la réaction n + ^{3}He $\longrightarrow$ p + T qui sont appliquées dans notre travail par utilisation de compteurs proportionnels gazeux.

1.3 Classification des neutrons

Les neutrons sont classés selon leur vitesse. Celle-ci sera désignée par v et sera souvent exprimées en $m.s^{-1}$. À cette vitesse correspond, dans le domaine non relativiste, une

énergie cinétique E_c, donnée par la formule :

$$E_c = \frac{1}{2}mv^2 \tag{1.1}$$

On exprime habituellement E_c en eV.

Dans le cadre de notre étude, nous distinguerons :

a) Les neutrons *rapides*. Ce sont les neutrons d'énergie cinétique supérieure à 1 MeV. L'exemple type de neutrons rapides est celui des neutrons de fission. Ceux-ci ne sont pas monocinétiques, mais distribués selon un spectre d'énergie.

b) Les neutrons *intermédiaires*. Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique est généralement comprise entre 100 keV et 1 MeV.

c) Les neutrons épithermiques. Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique est comprise entre quelques eV et 100 keV.

c) Les neutrons *thermiques*. Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique moyenne est environ égale à $\frac{3}{2}kT$, soit 0,025 eV à 298 K.

1.3.1 Interaction des neutrons avec la matière

L'interaction d'un neutron avec la matière est caractérisée, en premier lieu, par son faible pouvoir ionisant par rapport aux des autres particules élémentaires chargées. De par sa nature même, le neutron n'a pas d'interaction d'origine coulombienne avec les électrons du cortège. La seule forme d'interaction importante est donc celle du neutron avec les noyaux. Le ralentissement des neutrons dans un milieu gazeux, notamment, est dû aux collisions de ceux-ci avec les noyaux du milieu traversé. Elle se manifeste de plusieurs manières : par diffusion élastique, diffusion inélastique, capture radiative, transmutation ou fission (cf figure 1.1).

1.3.2 Sections efficaces d'interaction

La donnée fondamentale des phénomènes neutroniques est l'ensemble des probabilités d'interaction des neutrons avec les différents noyaux et elle varie selon leur énergie. Les sections efficaces sont les grandeurs caractéristiques de ces probabilités.

La section efficace d'une interaction donnée, souvent notée σ, s'exprime en unité de surface, en cm^2 ou plus généralement le *barn* avec 1 $barn = 10^{-24}$ cm^2.

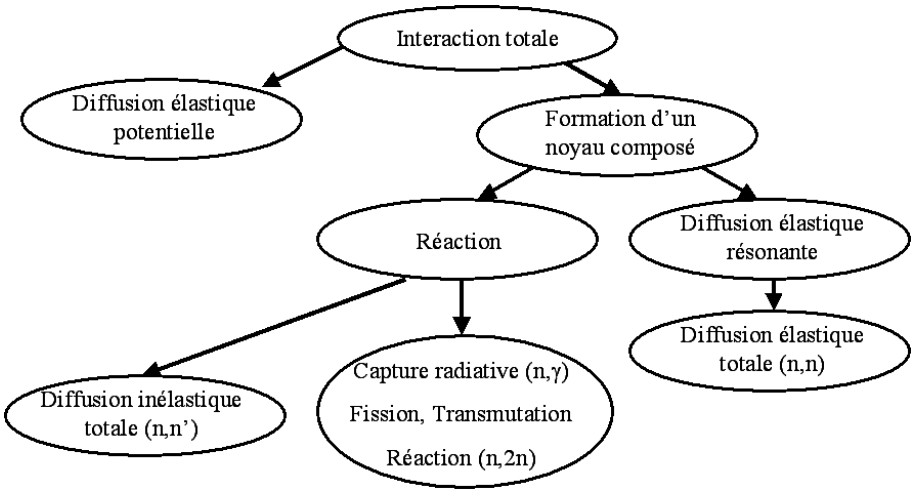


Fig. 1.1 – Types d'interaction neutron-matière
[4]

1.3.2.1 Diffusion élastique des neutrons

La diffusion élastique potentielle est l'interaction la plus "banale" qui existe avec tous les noyaux et à toute énergie : l'onde associée au neutron est simplement diffusée par la barrière de potentiel du noyau, sans pénétration, comme si celui-ci était une sphère impénétrable. D'un point de vue phénoménologique, cette diffusion peut être traîtée classiquement. Loin du noyau cible, le neutron décrit une trajectoire rectiligne. Lorsqu'il entre dans la zone d'action du noyau, on dit qu'il y a diffusion élastique si un neutron est réémis dans une direction quelconque, l'énergie cinétique, la quantité de mouvement et les masses au repos du système neutron-noyau étant conservées dans le processus.

Lorsqu'un neutron d'énergie cinétique E_n frappe un noyau cible initialement supposé au repos, l'énergie transmise au noyau de "recul" est donnée, dans le système du Laboratoire par :

$$E_r = E_n \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2\theta \tag{1.2}$$

E_r : énergie du noyau de recul, E_n : énergie du neutron, A : masse atomique du noyau de recul et θ : angle entre la direction du neutron incident et celle du noyau de recul.

Le Système de Centre de Masse permet de transformer le problème à deux corps en un problème à un seul corps. L'énergie transférée au noyau de recul dans le Système de Centre de Masse est :

$$E_r = E_n \frac{2A}{(1+A)^2}(1-\cos\phi) \tag{1.3}$$

ϕ : angle de diffusion du noyau de recul.

La relation (1.3) montre qu'un projectile ne peut céder une part importante de son énergie qu'à des masses sensiblement égales à la sienne. On justifie ainsi le choix des gaz hydrogénés comme milieux "ralentisseurs" de neutrons.

Si le noyau cible est un proton, les relations 1.2 et 1.3 deviennent :

- dans le Système du Laboratoire :

$$E_p = E_n \cos^2 \theta \tag{1.4}$$

- dans le Système de Centre de Masse :

$$E_p = \frac{E_n}{2}(1 - \cos \phi) \tag{1.5}$$

Dans le cas de la diffusion élastique, la probabilité pour qu'un proton ait une énergie comprise entre E_p et $E_p + dE_p$ est :

$$\begin{aligned} P(E_p)dE_p &= \frac{\sigma(\phi)}{\sigma_s} d\omega \\ &= \frac{\sigma(\phi)}{\sigma_s} 2\pi \sin \phi d\phi \end{aligned} \tag{1.6}$$

où $\sigma(\phi)$ est la section efficace différentielle angulaire de diffusion et σ_s est la section efficace totale de diffusion.

En combinant les équations (1.5) et (1.6), nous avons :

$$P(E_p) = \frac{\sigma(\phi)}{\sigma_s} \frac{4\pi}{E_n} \tag{1.7}$$

En admettant que la diffusion élastique des neutrons sur les atomes d'hydrogène est isotrope jusqu'à 5 MeV dans le SCM [5], la symétrie sphérique entraîne :

$$\frac{\sigma(\phi)}{\sigma_s} = \frac{1}{4\pi} \tag{1.8}$$

La répartition énergétique des protons de recul déplacés par les neutrons d'énergie E_n est donc :

$$\begin{aligned} P(E_p) &= \frac{1}{E_n} \quad pour\ E_p < E_n \\ &= 0 \quad pour\ E_p > E_n \end{aligned} \tag{1.9}$$

Comme nous pouvons le voir, cette distribution est rectangulaire (cf. figure 1.2)

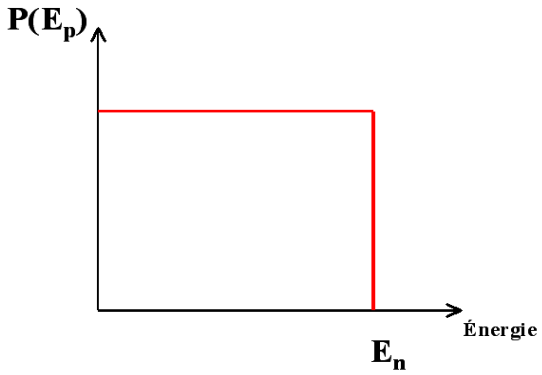


Fig. 1.2 – Distribution énergétique idéale des protons de recul dans le Système de Centre de Masse

La diffusion cesse d'être isotrope, dans le Système de Centre de Masse, lorsque l'énergie du neutron incident est supérieure à quelques MeV et, vis-à-vis de l'énergie du neutron, l'écart à l'anisotropie est d'autant plus précoce que le noyau cible est lourd.

À l'exception du domaine étroit des énergies de résonance, les sections efficaces de diffusion ne varient pas beaucoup en fonction de l'énergie, et surtout gardent le même ordre de grandeur (1 à 10 barns) pour l'ensemble des noyaux. Elles ont tendance à diminuer pour les énergies supérieures à quelques MeV [4].

L'hydrogène est un cas à part : son noyau, le proton, est le plus simple qui soit et son étude la plus poussée. Aux énergies intermédiaires (de 1 eV à 10 keV), pour l'hydrogène *libre*, la section efficace de diffusion est constante et est relativement importante : 20,4 barns.

D'autre part, lorsque l'énergie du neutron incident est très faible et de l'ordre de grandeur des énergies de liaison moléculaires (c'est-à-dire inférieure à 1 eV), la section efficace de diffusion est augmentée du fait des possibilités d'échanges d'énergie avec des niveaux de vibration moléculaires. On montre que, pour un noyau de masse atomique A,

la section efficace pour un état rigidement lié est augmentée, vis-à-vis du noyau libre, par un facteur $\left(\frac{A+1}{A}\right)^2$ [4].

Cette augmentation de la section efficace pour les très faibles énergies du neutron existe pour tous les noyaux, mais elle est particulièrement prononcée pour l'hydrogène où ce facteur vaut 4 et reste très sensible pour le deutérium.

À haute énergie, par contre, la section efficace de diffusion de l'hydrogène devient très faible.

Sa section efficace de diffusion, donnée par Gammel, s'exprime par la relation semi-empirique suivante [6] :

$$\begin{aligned}\sigma(E) = & \frac{5,063\pi}{(1+7,417E+0,1105E^2)} \\ & + \frac{0,8652\pi}{(1+0,2427E+0,0028E^2)}\end{aligned} \tag{1.10}$$

1.3.2.2 La diffusion inélastique

Dans le cas de la diffusion inélastique, il y a pénétration du neutron dans le noyau. Pour décrire cette intéraction, le modèle du "noyau composé" est souvent utilisé. Dans ce modèle, trois étapes successives sont distinguées :

- *la voie d'entrée* : incorporation par le noyau-cible du neutron incident, donnant l'isotope de rang immédiatement supérieur et acquisition par cet isotope d'une énergie d'excitation égale à la somme de l'énergie de liaison du noyau supplémentaire (travail des forces nucléaires de liaison) et de l'énergie cinétique apportée par le neutron ;
- la vie proprement dite du *noyau composé*, isotope du noyau-cible : elle est de l'ordre de 10^{-14} s . Cette durée est courte à notre échelle mais suffisamment longue à l'échelle nucléaire pour que l'énergie d'excitation puisse "s'uniformiser" au sein du noyau composé. Autrement dit, celui-ci vit suffisamment longtemps pour "oublier" comment il a été créé ; ce qui va suivre sera indépendant du processus qui a créé le noyau composé ;
- *la voie de sortie* : le noyau composé excité va rapidement se désintégrer par un processus de type radioactif ; avec l'énergie acquise lors de l'absorption d'un neutron, plusieurs mécanismes sont possibles et entrent en compétition.

Cette énergie d'excitation du noyau composé notée E_e est, en effet, importante : l'énergie de liaison du neutron supplémentaire est de l'ordre d l'énergie de liaison moyenne par nucléon, soit entre 5 et 10 MeV environ et l'énergie que le neutron apporte peut aller de 0 à quelques MeV. Elle s'exprime comme suit :

$$E_e = E_l + E_c$$

où E_l est l'énergie de liaison du neutron supplémentaire et E_c est l'énergie cinétique apportée par le neutron incident.

Le noyau, comme tout système quantique, peut se trouver à différents niveaux d' énergie, seul l'état fondamental pouvant être stable. La différence d'énergie entre le niveau fondamental et le premier niveau nucléaire va de quelques keV (noyaux légers) à quelques MeV (noyaux lourds). S'il se trouve que E_c est telle que E_e soit très proche de la "distance" du niveau fondamental à l'un des niveaux excités, la probabilité de formation du noyau composé, donc de la réaction, sera grande. Cela va se traduire par une brusque remontée de la section efficace à cette énergie : c'est une *résonance*, de largeur égale à celle du niveau considéré [7].

Les modes de désintégration possibles sont les suivants :

- réémission d'un neutron emportant toute l'énergie excédentaire : c'est la *diffusion élastique résonnante*, que l'on distinguera de la diffusion élastique potentielle ;
- réémission d'un neutron emportant une partie de l'énergie, le noyau restant dans un état excité mais à un niveau moins élevé (il se désexcite ensuite par émission d'un photon γ : c'est la *diffusion inélastique*). Un bilan énergétique simple montre qu'une telle réaction n'est possible que si l'énergie cinétique du neutron incident est au moins égale à la différence des énergies du premier niveau et niveau fondamental du noyau cible. Dans une diffusion inélastique, la quantité de mouvement est conservée mais non l'énergie cinétique ;
- émission d'un ou de plusieurs photons γ : c'est la *capture radiative* qui sera traitée dans le paragraphe suivant.

1.3.2.3 La capture radiative

Le neutron est absorbé par le noyau cible. Il y a formation d'un noyau composé dans un niveau excité. Le noyau revient au niveau fondamental en émettant un ou plusieurs photons γ. Cette réaction est appelée *capture radiative* et est notée (n,γ).

Les sections efficaces de la capture radiative sont, en règle générale, d'autant plus grandes que les neutrons sont moins rapides et d'ordre de grandeur très variable selon les nucléides.

On pourra observer un comportement que l'on retrouve de façon plus ou moins systématique pour toutes les courbes de sections efficaces de *capture radiative* [7] :

1/ un comportement général dit en "*1/v*", c'est-à-dire inversement proportionnel à la vitesse des neutrons ; cette loi est le plus souvent bien suivie par les sections efficaces de *capture radiative* dans le domaine des neutrons *thermiques*, c'est-à-dire en dessous de l'électronvolt ;
2/ un comportement complexe avec une courbe présentant de nombreux "pics" passablement irréguliers dans le domaine épithermique, typiquement entre quelques eV et quelques keV ; ces pics sont appelés "résonances" de la section efficace.

1.3.2.4 Les résonances

Que ce soit pour la diffusion élastique ou pour les absorptions, on note, la présence de résonances, c'est-à-dire d'augmentations brutales de la section efficace localement (à une énergie donnée). L'apparition de résonances provient de la structure en niveaux des états excités du noyau composé obtenu par absorption du neutron incident. L'énergie d'excitation acquise par le noyau composé est la somme de l'énergie de liaison du neutron incident (travail des forces nucléaires) et de l'énergie cinétique apportée par ce neutron. Si cette énergie d'excitation se trouve juste sur l'un des niveaux du noyau composé, ou dans son voisinage immédiat, la réaction se fera aisément et une grande section efficace sera observée (voir figure 1.3). Si, au contraire, l'énergie d'excitation ne tombe pas sur l'un des niveaux du noyau composé, la réaction se fera plus difficilement, ce qui se traduit par une faible section efficace. La section efficace neutronique, peut ainsi varier de plusieurs décades pour une très faible variation de l'énergie du neutron.

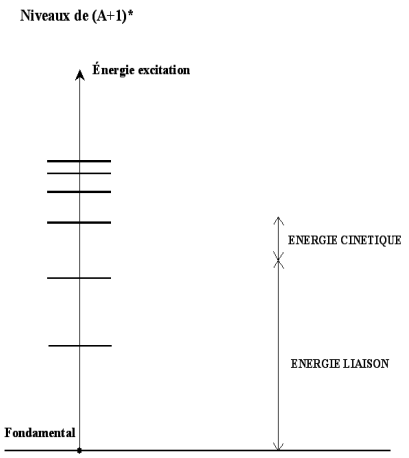


Fig. 1.3 – Une résonance est observée pour chaque valeur de l'énergie cinétique du neutron incident amenant l'énergie d'excitation du noyau composé sur l'un des niveaux nucléaires [7]

1.4 Les sources neutroniques

Les radio-isotopes, en tant que sources de neutrons conventionnelles, n'existent pas dans le même sens où les sources de rayonnement γ sont disponibles à partir de différents noyaux pour lesquels la décroissance β existe. Les choix possibles pour les sources radioisotopiques de neutrons sont limités et sont basés soit sur la fission spontanée, soit sur les réactions nucléaires pour lesquelles la particule incidente est le produit des processus conventionnels de décroissance. La principale source de neutrons dans les réacteurs est évidemment celle des fissions. Cependant, dans d'autres applications de la neutronique, d'autres sources de neutrons peuvent être mises en œuvre ; et, même dans un réacteur, il est nécessaire d'initier la réaction en chaîne par une source autre que celle de la fission induite par neutron.

Plusieurs nucléides transuraniens lourds ont une probabilité de décroissance de fission spontanée appréciable. Quelques neutrons rapides peuvent être émis pour chaque événement de fission, ainsi un échantillon d'un tel radionucléide peut être une source neutronique isotopique simple et convenable. D'autres produits du processus de fission sont les produits lourds de fission, les photons γ de fission spontanée et l'activité beta et gamma des produits de fission accumulés à l'intérieur de l'échantillon. Quand il est utilisé en tant que source de neutrons, l'isotope est généralement encapsulé dans un contenant suffisamment épais de telle façon que seuls les neutrons rapides et les photons γ émergent de la source.

1.4.1 Les sources de fission spontanée

La source de ^{252}Cf [8] [9] [10] [11] est une des sources les plus usitées dans la recherche nucléaire.

Le radioisotope ^{252}Cf est un émetteur neutronique intense habituellement confiné dans des capsules compactes et cylindriques. En ce qui concerne la fabrication, les sources de californium 252 contiennent très peu de matière active (généralement quelques microgrammes).

La décroissance par émission α (probabilité 96,91%) et par fission spontanée (probabilité 3,09%) induit une demi-vie globale de 2,645 ans et une émission neutronique de $2,314$ neutrons s $^{-1}$ μ g^{-1}.

Le spectre énergétique des neutrons est similaire à celui d'un réacteur de fission, l'énergie la plus probable étant de 0,7 MeV et l'énergie moyenne valant 2,1 MeV [8]. La forme analytique du spectre produit par la source de californium est du type spectre de fission de Watt dont les paramètres sont donnés comme suit :

$$F(E) = C \ \exp -\frac{E}{a} \ \sinh \sqrt{b \ E} \tag{1.11}$$

où E est l'énergie des neutrons (MeV), $F(E)$ est la probabilité d'émission, C est une constante de normalisation, $a = 1,025$ MeV et $b = 2,926$ MeV^{-1}. Un calcul analytique permet de montrer que l'énergie moyenne du spectre de Watt de la source de californium 252 est donnée par [7] :

$$E_{moy} = \frac{1}{4}a(ab + 6) \tag{1.12}$$

L'application numérique donne $E_{moy} = 2{,}306$ MeV.

La constante de normalisation C est déterminée en résolvant l'équation suivante :

$$\int_0^\infty C \ e^{-\frac{E}{a}} \ \sinh \sqrt{b \ E} = 1 \tag{1.13}$$

ce qui conduit à :

$$C = \frac{2}{a\frac{3}{2} \ \sqrt{\pi} \ e\frac{ab}{4} \ \sqrt{b}} \tag{1.14}$$

Dans le cas du spectre de Watt de la source de californium, $C \approx 0,3003$. L'allure de ce spectre est représentée figure 1.4.

Le mécanisme principal de désintégration est la décroissance α, et le taux d'émission α est 32 fois celui de l'émission spontanée. En plus d'une émission de $3,8$ neutrons en moyenne, chaque fission de la source de californium donne naissance à $9,7$ photons γ. Plus de 85% de ceux-ci sont des photons γ de fission spontanée de haute énergie et sont émis dans la première nanoseconde suivant l'événement de fission.

Chaque fission donne naissance à deux fragments de fission, qui, de par la conservation de l'impulsion, sont émis dans des directions opposées. Seul un fragment de fission peut s'échapper de la surface, l'autre fragment étant perdu par absorption dans le volume, car la source de fission spontanée consiste en un dépôt mince sur un volume de base. Les fragments de fission sont des ions positifs de masse moyenne ; la fission est, de façon prédominante asymétrique, ainsi les fragments sont divisés entre un "groupe léger" et un "groupe lourd", dont les nombres de masse moyens sont de 108 et 143. L'énergie initialement partagée par les fragments est de 185 MeV. La distribution en énergie est elle aussi asymétrique et la plus grande partie en énergie est emportée par le fragment le plus léger.

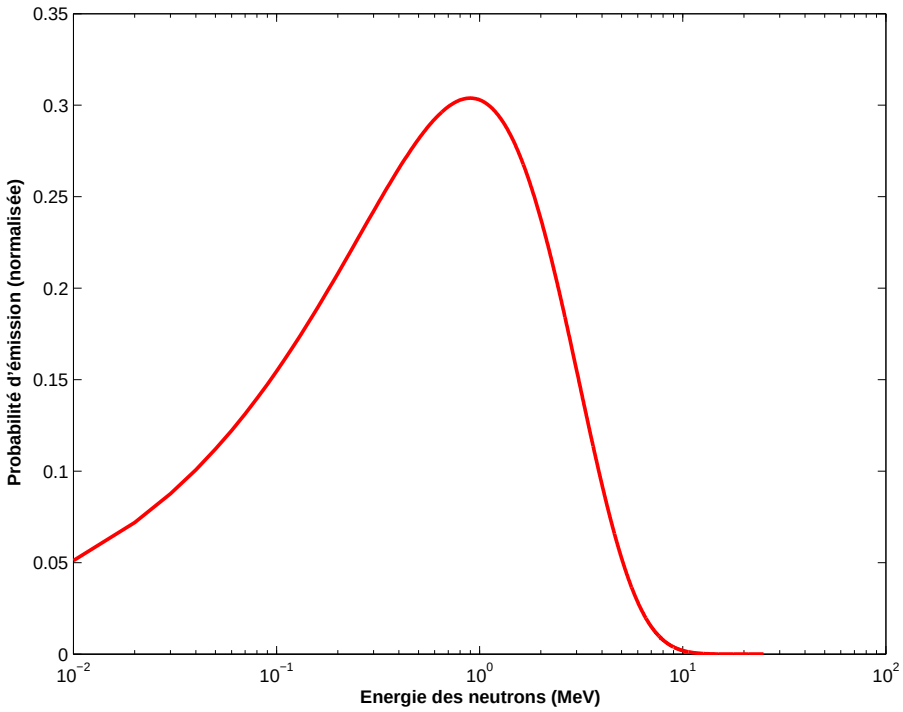


Fig. 1.4 – Spectre de Watt de la source de ^{252}Cf

Le nucléide ^{252}Cf peut être également utilisé afin de produire un spectre à forte com-

posante de neutrons thermiques. Une des méthodes les plus usitées consiste à placer un matériau ralentisseur de neutrons autour de la source : son rôle est de "thermaliser" les neutrons émis par la source. De façon générale, les matériaux ralentisseurs sont caractérisés par trois grandeurs : le paramètre de ralentissement ξ (c'est la valeur moyenne de la perte de léthargie par collision), le pouvoir ralentisseur (c'est le produit $\xi N\sigma_{élastique}$ où $N\sigma_{élastique}$ est la section efficace macroscopique de diffusion élastique) et l'efficacité de ralentissement (qui est le rapport $\frac{\xi N\sigma_{élastique}}{\Sigma_a}$) [4].

Il est usuel d'ajouter une sphère contenant de l'eau lourde (D_2O) à la source de californium [12]. En effet, l'eau lourde présente une efficacité de ralentissement très élevée (de l'ordre de 12000) et se révèle donc être un excellent choix en tant que matériau ralentisseur.

Les principales caractéristiques spectrométriques d'une telle source sont les suivantes :

- un pic à 2,5 MeV provenant des neutrons n'ayant subi aucune collision et qui proviennent directement du nucléide ^{252}Cf ;
- une large "vallée" entre 0,5 MeV et 1 MeV due à la dégradation des neutrons par diffusion sur le deutérium ;
- deux anti-résonances très marquées autour de 0,4 MeV et 1 MeV causées par l'absorption résonnante des neutrons sur l'oxygène.

Un calcul Monte Carlo (débit de fluence par unité de léthargie avec l'hypothèse de détecteur point) permet d'avoir une idée de l'allure du spectre énergétique pour un champ neutronique ^{252}Cf + D_2O (figure 1.5).

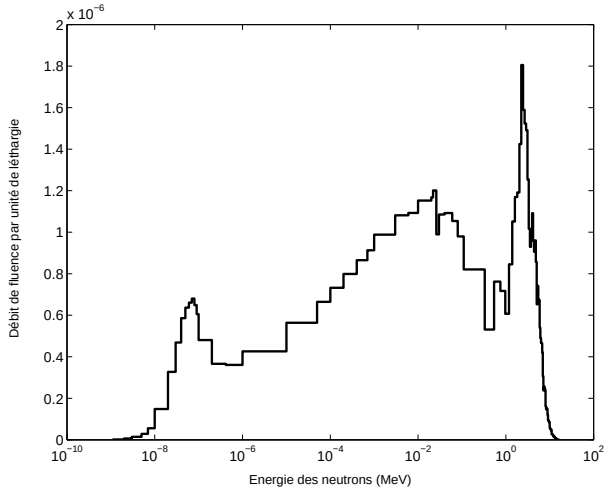


Fig. 1.5 – Spectre énergétique des neutrons d'une source de californium 252 modérée avec l'eau lourde

L'addition d'un écran de Cadmium d'épaisseur 1 mm permet de réduire la composante spectrale des neutrons thermiques comme il est possible de le voir sur la figure 1.6.

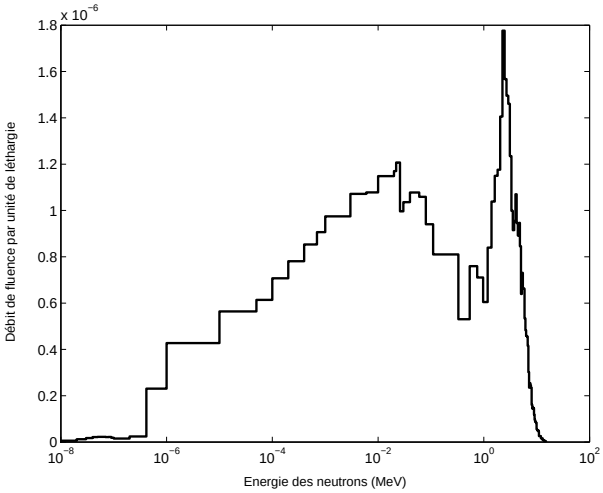


Fig. 1.6 – Spectre énergétique des neutrons d'une source de californium 252 modérée avec l'eau lourde et à laquelle est ajouté un écran de cadmium

Le cadmium présente en effet une section totale d'interaction avec les neutrons très importante pour les basses énergies (jusqu'à la dizaine d'électronvolts) [13] (voir figure 1.7).

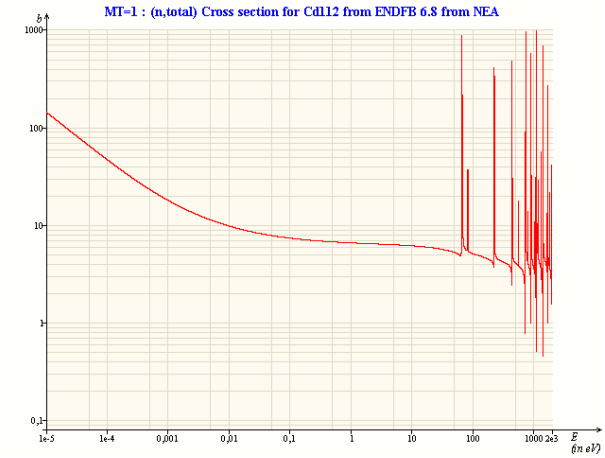


Fig. 1.7 – Section efficace totale d'interaction avec les neutrons pour le cadmium [14]

1.4.2 Les radioisotopes sources (α,n)

Il est facile d'obtenir des particules α énergétiques à partir de la fission de plusieurs nucléides convenables. Il est donc possible de fabriquer une petite source encapsulée en

associant un isotope émetteur α et un matériau cible adéquat. Quelques matériaux cibles sont capables de donner naissance à des réactions (α,n). La production de neutrons est maximale lorsqu'on choisit le beryllium comme cible [5]. Ils sont produits suivant la réaction

$$^{4}_{2}\alpha + ^{9}_{4}\mathrm{Be} \rightarrow ^{12}_{6}\mathrm{C}{+}\mathrm{n}$$

avec une valeur Q de $+5,71$ MeV. La production de neutrons selon cette réaction lorsqu'un faisceau de particules α frappe une cible dont l'épaisseur est plus grande que leur parcours, est donnée par la figure 1.8.

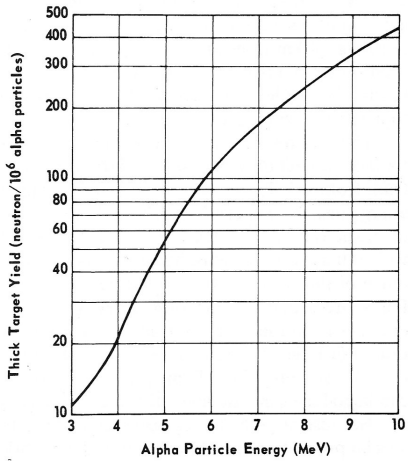


Fig. 1.8 – Nombre de neutrons produits par les particules alpha dans une cible épaisse de béryllium en fonction de leur énergie [5]

La majeure partie des particles α est stoppée dans la cible et seulement 1 particule sur 10^4 réagit avec le noyau de Be. Du point de vue pratique, tous les émetteurs α sont des *actinides* hormis le polonium dans PoBe et le radium dans RaBe. Des recherches ont montré qu'il est possible de fabriquer un alliage stable entre les *actinides* et le beryllium sous la forme MBe_{13}, où M représente le métal actinide. La plupart des sources existantes sont donc fabriquées de façon métallurgique dans la forme de l'alliage décrit précédemment et chaque particule α a la possibilité d'interagir avec le noyau de Be sans perte d'énergie intermédiaire [5].

La source de ^{239}Pu/Be est a une émission limitée à 10^7 n.s^{-1}. De ce fait, des sources incorporant de ^{241}Am (période de 433 ans) sont utilisées pour obtenir un taux d'émission plus important. La source (α,n) ^{241}AmBe est utilisée dans le présent travail.

Les spectres énergétiques des neutrons de telles sources sont similaires et les quelques différences qui apparaissent éventuellement reflètent de petites variations dans les énergies des particules α primaires. En effet, ces particules perdent une quantité variable d'énergie avant de réagir avec le noyau de beryllium. Pour les sources qui ne contiennent que quelques grammes de matière active, le spectre des neutrons qui émergent de la surface de la source est globalement le même que celui des neutrons créés dans les réactions (α,n). Pour des sources plus larges, les processus secondaires de diffusion des neutrons dans la source, les réactions (n,2n) dans le beryllium, et les événements (n, fission) à l'intérieur du plutonium et d'autres actinides peuvent faire que le spectre énergétique des neutrons soit dépendant de la taille de la source [15].

Du fait des activités très importantes des isotopes actinides inclus dans ces sources de neutrons, des précautions spéciales doivent être prises pendant leur conception pour s'assurer que le matériau soit encapsulé de façon sûre. L'alliage actinide-beryllium est habituellement scellé à l'intérieur de deux pièces cylindriques en acier inoxydable soudées. De l'espace doit être prévu dans le volume des cylindres car il faut prendre en compte la lente évolution de l'hélium gazeux formé lorsque les particules α sont stoppées et neutralisées.

Il est important de signaler que les sources de PuBe et de AmBe sont également émetrices de photons γ. Ces sources génèrent donc des champs mixtes (n,γ), ce qui peut compliquer l'analyse spectrale des mesures faites avec les détecteurs. Des méthodes de discrimination neutron/γ sont ainsi mises en place afin d'exploiter correctement les spectres neutroniques.

1.4.3 Les sources photo-neutroniques

Quelques radioisotopes émetteurs γ peuvent être également employés pour produire des neutrons en les combinant avec un matériau cible approprié. Le principe de telles sources *photo-neutroniques* consiste à fournir suffisamment d'énergie d'excitation à un noyau-cible *via* un photon γ pour permettre l'émission d'un neutron libre. Du point de vue pratique, seuls deux noyaux-cibles, ^{9}Be et ^{2}H, sont utilisés en tant que sources *photo-neutroniques*. Comme l' énergie seuil pour le béryllium est de 1,67 MeV et de 2,23 MeV pour le deutérium, le nombre de radioisotopes possibles est limité [16].

Wattenbert [17] donne l'énergie des photoneutrons comme suit :

$$E_n = \frac{A-1}{A}\Big[E_\gamma - Q - \frac{E_\gamma^2}{1862(A-1)}\Big] + \delta\cos\theta \tag{1.15}$$

où E_n est l'énergie des neutrons (en MeV), A est le nombre de masse du noyau-cible, E_γ est l'énergie des γ (en MeV), Q est l'énergie seuil en MeV de la réaction pour un noyau de masse A et δ est la dispersion en énergie (en MeV) qui est fonction de l'angle θ entre la direction du photon γ incident et celle dans laquelle est émis le neutron,

$$\delta \approx E_\gamma \Big(\frac{2(A-1)(E_\gamma - Q)}{931 A^3} \Big)^{\frac{1}{2}} \tag{1.16}$$

Comme le souligne Feld [18], la dispersion d'énergie inhérente aux sources de photoneutrons n'est pas très large. Dans la plupart des sources, quand la source de photons γ est entourée par du deutérium ou du béryllium, la dispersion en énergie ΔE_n est donnée par $\Delta E_n = 2\delta$.

1.4.4 Production de neutrons par d'autres moyens

Les sources produites en utilisant des réactions induites par radioactivité, très faibles, sont théoriquement suffisantes pour faire démarrer une réaction en chaîne dans un réacteur. Une source beaucoup plus intense Les sources produites en utilisant des réactions induites par radioactivité, très faibles, sont théoriquement suffisantes pour faire démarrer une réaction en chaîne dans un réacteur. Une source beaucoup plus intense est introduite de façon à suivre la divergence par mesure de flux neutronique jusqu'à ce qu'une puissance significative soit atteinte : alors la source peut être indifféremment ôtée ou laissée en place, puisque la réaction en chaîne de fissions induites devient prépondérante.

Les sources de "démarrage" les plus courantes utilisent la réaction (α,n) ou la réaction (γ,n) sur le béryllium : elles sont fabriquées à partir d'un mélange de béryllium et d'un émetteur α.

Pour les applications nécessitant des sources plus intenses, c'est la réaction de fusion D+T qui est la plus souvent utilisée : la technique habituelle consiste à accélérer des deutons (obtenus par ionisation de deutérium) qui viennent frapper une cible contenant du tritium.

Un autre moyen de produire des neutrons consiste à utiliser les *réactions de spallation*. Ces réactions sont induites par des nucléons ou des petits noyaux s'ils sont animés d'une grande vitesse. Elles ont lieu sur les noyaux intermédiaires ou lourds : en leur arrachant des fragments, ces réactions éjectent des nucléons ou des noyaux légers (isotopes de l'hydrogène, de l'hélium, du lithium, voire du bore).

Ces réactions de spallation se font en deux étapes [7] :

- la première étape ne dure que le temps de transit de la particule incidente dans le noyau rencontré, soit 10^{-22} à 10^{-21} seconde ; par collisions successives, quelques nucléons sont éjectés : c'est la *cascade intranucléaire* ;
- la seconde étape est plus longue, d'une durée de 10^{-16} seconde : le noyau résiduel, très énergétique car il a conservé une partie de l'énergie de la particule incidente, se libère de cet excès d'énergie en émettant encore quelques nucléons : c'est *l'évaporation*.

En envoyant un proton d'une énergie de l'ordre du GeV dans une cible constituée de noyaux lours (tungstène, plomb, bismuth, thorium, uranium...), celui-ci peut produire une trentaine de neutrons secondaires.

1.5 Les méthodes et instruments existants pour la détection des neutrons

1.5.1 Le compteur Geiger-Müller

Le compteur Geiger-Müller est un des détecteurs de rayonnement les plus anciens. Il a été mis au point en 1928. Sa simplicité d'utilisation, son faible coût ont fait que ce détecteur est encore utilisé jusqu'à aujourd'hui. Il est constitué d'un tube Geiger-Müller et d'un système d'amplification et d'enregistrement du signal. Le tube Geiger-Müller, une chambre métallique cylindrique dans l'axe de laquelle est tendu un mince fil métallique, est rempli d'un gaz sous faible pression. Une tension de l'ordre de 1000 volts est établie entre le cylindre (qui fait office de cathode) et le fil (anode) [19] [20] [21].

Quand un rayonnement ionisant pénètre à l'intérieur du tube geiger-müller, il ionise le gaz, c'est-à-dire qu'il arrache des électrons, par effet Compton. Ces électrons se multiplient très vite par avalanche électronique, dite "avalanche de Townsend" , rendant le gaz conducteur pendant un temps bref (phénomène de décharge) : les électrons sont accélérés par la haute tension, ils percutent des molécules de gaz et provoquent ainsi d'autres ionisations en cascade [22] [23] [24] [25].

Du fait de cette cascade, c'est un détecteur qui fonctionne en permanence en saturation. L'appareil est sensible au plus petit événement, mais le temps mort est assez

important, de l'ordre de 200 microsecondes, et le détecteur sature à partir de quelques centaines de coups par secondes ; si le flux est plus important, des particules traversent le compteur sans être détectées. Par ailleurs, le facteur d'amplification est tel que toutes les impulsions sont à la hauteur maximale, il n'est pas possible de distinguer les différents types de particules.

Après amplification, le signal électrique ainsi produit est enregistré et se traduit par une indication visuelle (aiguille, lampe) ou sonore (déclic).

1.5.2 Les détecteurs à scintillation liquide et solide

De nombreux matériaux ont la propriété d'émettre de la lumière lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement ionisant. C'est ce phénomène qui est exploité dans les détecteurs à scintillation. En effet, l'énergie déposée au sein du milieu scintillant par la particule incidente est directement proportionnelle à la lumière produite. Cette lumière peut être détectée par un dispositif photosensible, si le milieu est transparent dans le domaine de longueur d'onde correspondant au moins à certains de ces photons [5] [26]. Il existe divers milieux qui satisfont à cette condition de transparence :

- les scintillateurs organiques (plastique, liquide, cristal) qui utilisent le mécanisme de fluorescence par l'intermédiaire des états excités des molécules,
- les scintillateurs inorganiques (cristal) : NaI(Tl), CsF2, BGO qui utilisent le mécanisme de fluorescence *via* les états intermédiaires d'impureté [27].

1.5.3 Les sphères de Bonner

Le système multi-sphères ou plus communément les sphères de Bonner est constitué d'un détecteur sensible aux neutrons thermiques qui est placé au centre de sphères modératrices de diamètres différents. Ces sphères sont généralement en polyéthylène. Une première description des sphères de Bonner a été réalisée par Bramblett et *al.* [28]. Le détecteur de neutrons thermiques, combiné avec une sphère modératrice, a une sensibilité aux neutrons sur un large domaine d'énergie. Cependant, la sensibilité de chaque sphère de Bonner est maximale à une certaine énergie de neutrons. Cette énergie dépend du diamètre de la sphère [29]. Pour une sphère de petite taille, le phénomène de modération est faible. Les neutrons de basse énergie ont une probabilité raisonable d'être détectés au sein du système, alors que les neutrons plus énergétiques ont tendance à s'échapper.

Pour les sphères de taille plus importante, le phénomène de modération est accentué. La capture des neutrons de basse énergie de produit plus facilement et ce sont les neutrons rapides qui sont détectés au sein du système. Dans ce cas, l'efficacité de détection est plus important à haute énergie.

Les détecteurs utilisés au sein des sphères modératrices sont les suivants :
- un scintillateur ^{6}LiI(Eu) [28],
- un compteur proportionnel $^{10}BF_3$ [30],
- un compteur proportionnel à ^{3}He [31] [32] [33] [34] [35],
- un détecteur à activation [36]. Le matériau utilisé pour l'activation est l'or ou l'indium.

1.6 Les compteurs proportionnels à remplissage gazeux

1.6.1 La théorie des compteurs proportionnels

Le compteur proportionnel est un détecteur gazeux qui fut introduit à la fin des années 1940. Les compteurs proportionnels sont quasiment toujours utilisés en mode "impulsions" et leur principe s'appuie sur le phénomène de *multiplication gazeuse* qui amplifie la charge représentée par les paires d'ions originellement créées à l'intérieur du gaz.

Les premières applications des compteurs proportionnels furent leur utilisation en tant que détecteurs à nucléons de recul dans les années 1960 [37].

1.6.1.1 Le principe de proportionnalité

Le compteur proportionnel est composé de deux éléments principaux :

- la cathode : il s'agit d'une coque conductrice de forme simple, sphérique ou cylindrique ;
- l'anode : il s'agit d'un fil métallique tendu suivant l'axe de la cathode.

Une tension de polarisation est appliquée entre l'anode et la cathode. Elle permet d'accéder à une large gamme de régimes, illustrée par la figure 1.9.

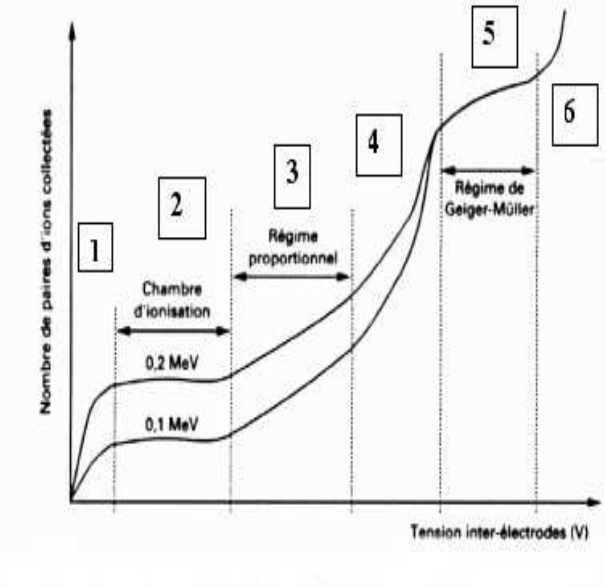


Fig. 1.9 – Différentes régions de fonctionnement des détecteurs gazeux. L'amplitude de l'impulsion observée est tracée en fonction de la tension appliquée.

Les différents types de détecteurs représentés opèrent en mode "impulsions". L'amplitude des impulsions observées dans le détecteur est tracée en fonction de la tension appliquée.

Aux très basses valeurs de la tension, le champ électrique est trop faible pour prévenir la recombinaison des paires d'ions originelles, et la collection de charge finale est moindre que celle des paires d'ions de départ. Au fur et à mesure que la tension augmente, le phénomène de recombinaison disparaît et la région de "saturation des paires d'ions" est atteinte.

En augmentant encore la tension de polarisation, le champ électrique seuil à partir duquel la multiplication gazeuse débute, est atteint. La charge collectée commence alors à se multiplier et l'amplitude des impulsions observées devient plus importante. Pour un certain domaine de champ électrique, la multiplication gazeuse va être linéaire et la charge collectée va être proportionnelle au nombre de paires d'ions originelles créées par la particule chargée. Il s'agit de la région de *vraie proportionnalité* et représente le mode de fonctionnement des compteurs proportionnels conventionnels.

Si la tension ou le champ électrique appliqués sont encore amplifiés, des effets non-linéaires apparaissent. La plupart de ces effets sont dus aux ions positifs qui sont créés dans chaque processus d'ionisation secondaire. Bien que les électrons libres soient rapide-

ment collectés, les cations se meuvent beaucoup plus lentement, et pendant le temps pris pour la collection des électrons, ces cations continuent à se mouvoir de façon totalement libre. Ainsi, chaque impulsion dans le compteur crée un "nuage" de cations, qui sera très lent à disperser car il va dériver vers l'anode. Si la concentration de ces cations devient suffisamment grande, ils vont représenter une "charge d'espace" qui peut altérer de façon significative la forme du champ électrique dans le détecteur. À partir de ce moment-là, étant donné que la multiplication gazeuse est dépendante de la valeur du champ électrique, quelques non-linéarités vont être observées. Ces effets vont marquer le début de la région de "proportionnalité limitée".

Si la tension appliquée devient encore plus importante, la "charge d'espace" créée par les cations va jouer un rôle prédominant dans le devenir de l'impulsion. Dans ces conditions, l'avalanche électronique se produit jusqu'à ce que un nombre suffisant de cations soit créé pour réduire le champ électrique en-deçà d'un point où plus aucune multiplication gazeuse supplémentaire ne peut avoir lieu. Ainsi, le processus décrit est auto-limitatif et se termine quand le même nombre total de cations se forme quel que soit le nombre initial de paires ioniques créées par le rayonnement incident. De ce fait, chaque impulsion en sortie du détecteur est de même amplitude et ne reflète plus les propriétés du rayonnement incident. C'est la région de fonctionnement des compteurs *Geiger-Müeller*.

1.6.1.2 Fonctionnement interne : la zone de détection et de conversion

Dans le compteur proportionnel à protons de recul, on peut distinguer la zone de détection et de conversion et la zone de multiplication (figure 1.10).

Cette zone est constituée par la cavité gazeuse à l'intérieur de laquelle s'effectue la conversion des neutrons, particules indirectement ionisantes, en particules directement ionisantes, à savoir les protons. L'énergie cédée par le proton est essentiellement transférée par ionisation du milieu gazeux tout au long de sa trajectoire. Le nombre d'électrons libérés est fonction de l'énergie de la particule incidente et de l'aptitude du gaz à céder des électrons (potentiel d'ionisation du gaz).

$\frac{dE}{dx}$ représente la perte d'énergie du proton par unité de longueur appelée également transfert d'énergie linéique. Elle est donnée par la formule de *Bethe* [39] :

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^2}{mv^2} Z \Big[\ln \frac{2mV^2}{I} - \ln (1-\beta^2) - \beta^2 \Big] \tag{1.17}$$

où m et e sont respectivement la masse au repos et la charge de l'électron.

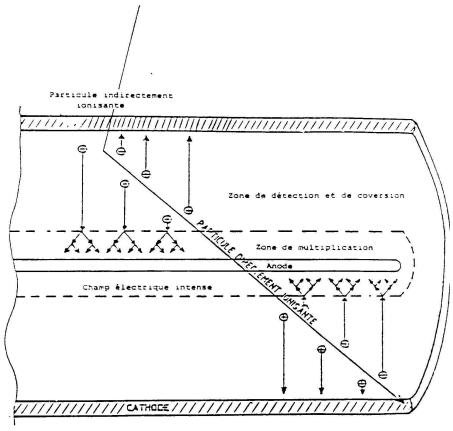


Fig. 1.10 – Différentes zones caractéristisques d'un compteur proportionnel à protons de recul [38]

z et v sont respectivement le nombre de charges et la vitesse de la particule (ici le proton)
Z est la densité d'électrons du milieu.
$\beta = \frac{v}{c}$ représente le rapport de la particule et de la vitesse de la lumière.
I est le potentiel d'ionisation moyen dans le gaz.

Des corrections supplémentaires sont nécessaires lorsque la vitesse des particules devient relativiste.

L'énergie perdue notée ϵ par la particule, lorsqu'elle parcourt la longueur l, s'obtient en intégrant $\frac{dE}{dx}$:

$$\epsilon = \int_0^l \frac{dE}{dx} dx \tag{1.18}$$

Si $\bar{w_p}$ est l'énergie moyenne nécessaire à la création d'une paire d'ions, le nombre total d'ionisations le long de la trajectoire de la particule, n_e est :

$$n_e = \frac{\varepsilon}{\bar{w_p}} \tag{1.19}$$

1.6.1.3 Fonctionnement interne : la zone de multiplication

Cette région est confinée à proximité du fil anodique où il y règne un champ électrique intense. Cette région commence en effet seulement à partir de l'endroit où le champ électrique devient suffisamment fort pour qu'il puisse y avoir avalanche électronique et s'étend

jusqu'à l'anode. Sous l'effet du champ électrique, les électrons primaires libérés par le proton dans la zone de détection dérivent vers le fil anodique le long des lignes de champ. Ils acquièrent une énergie cinétique importante et peuvent à leur tour mettre en mouvement d'autres électrons appelés *électrons secondaires*. Ce phénomène de multiplication d'électrons est appelé *avalanche de Townsend* et est caractérisé par le coefficient α [40]. La charge collectée par l'anode est donc largement supérieure à celle libérée par les particules ionisantes. Un facteur, noté G, donnant le rapport du nombre d'électrons collectés par l'anode sur le nombre d'électrons primaires, caractérise le fonctionnement du compteur. Nous y reviendrons dans le chapitre 3.

La zone de multiplication gazeuse doit être confinée dans un très petit volume par rapport au volume total du gaz détecteur. Dans ces conditions, la plupart des paires d'ions primaires sont formées en dehors de la zone de multiplication et l'électron primaire dérive le long des lignes de champ électrique vers cette région avant que la multiplication gazeuse ne se produise. Ainsi, chaque électron subit le même processus de multiplication indépendamment de l'endroit originel où il s'est formé, et le facteur de multiplication va être identique pour toutes les paires d'ions originelles.

C'est donc dans cette région que se produit l'impulsion récoltée en sortie du compteur proportionnel. La disposition des régions décrites et le fonctionnement interne sont fortement tributaires de la géométrie du détecteur lui-même.

1.6.2 Le choix de la géométrie

On peut distinguer deux types de géométrie dans la conception des compteurs proportionnels gazeux : les compteurs cylindriques et les compteurs sphériques.

1.6.2.1 Les compteurs cylindriques

Dans ce type de compteur, l'anode consiste en un fil métallique fin qui est tendu suivant l'axe du cylindre cathodique. Les extrémités de l'anode sont maintenues par deux tubes isolants. Par conséquent, le volume géométrique est différent du volume sensible. La cathode extérieure est habituellement mise à la masse afin de pouvoir appliquer une haute tension positive pour s'assurer que les électrons soient attirés par la zone à fort champ électrique au voisinage de l'anode. Pour les applications de détection des neutrons, la paroi de la cathode peut être épaisse de quelques millimètres afin d'assurer une rigidité

structurale adéquate.

Trois régions différentes peuvent être distinguées [41] :

- les régions dites *mortes* : ce sont les zones extrêmes du compteur où le champ électrique est nul ;
- les régions de *transition* : aux extrémités de l'anode, la présence des tubes en matériau isolant crée une déformation des lignes de force du champ électrique. Une compensation est obtenue en plaçant des anneaux de garde métalliques portés au même potentiel que celui de l'anode ;
- la région *sensible* : c'est la région centrale du compteur. Il est admis, dans une première approximation, que les lignes de force du champ électrique ne sont pas déformées et que la sensibilité de détection est la même en tout point de cette zone.

Un exemple de conception d'un compteur proportionnel cylindrique est donné en figure 1.11.

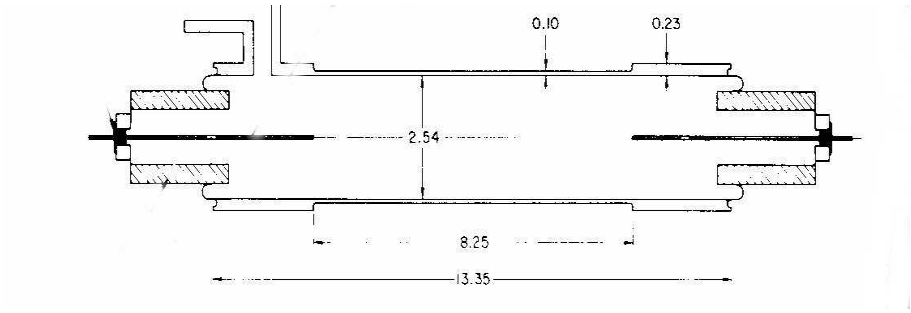


Fig. 1.11 – Vue en coupe d'un compteur proportionnel cylindrique [5]

En ce qui concerne les performances du compteur, il faut savoir que pour avoir une bonne résolution énergétique, chaque électron formé dans l'ionisation originelle doit être démultiplié par le même facteur dans le processus d'amplification gazeuse. Le principal effet mécanique pouvant affecter cette proportionnalité est une déformation du champ électrique qui est au départ axialement uniforme :

$$E(r) = \frac{V}{r \log \frac{a}{b}} \tag{1.20}$$

où V est la tension appliquée entre l'anode et la cathode, a, le rayon du fil anodique et b, rayon interne de la cathode.

Une variation du diamètre du fil anodique sur sa longueur peut produire une telle distorsion. Ainsi, la valeur de a dans l'équation ne va plus être constante en tout point le long

du fil anodique, ce qui va provoquer des variations non négligeables de la multiplication gazeuse. Pour éviter de tels problèmes, les compteurs sont conçus avec un fil anodique uniforme de diamètre assez grand. Cependant, il a été expérimentalement prouvé [42] que la rugosité de surface des fils de tungstène (usuellement recouverte d'or) ne perturbe pas la résolution énergétique même avec un diamètre de 12,5 μm. De façon générale, utiliser un fil anodique de diamètre aussi petit que possible minimise la haute tension exigée par une multiplication gazeuse donnée et tend à obtenir une bonne résolution énergétique en limitant les fluctuations de l'avalanche électronique.

1.6.2.2 Les compteurs sphériques

Un compteur ayant une cathode sphérique avec un fil anodique fin le long d'un diamètre, peut être considéré en première approximation comme un compteur cylindrique avec une cathode dont le rayon varie [43]. L'avantage d'un compteur sphérique est que sa réponse est indépendante de la direction des neutrons incidents détectés. Ceci sera en effet démontré expérimentalement par Benjamin *et al.* [43].

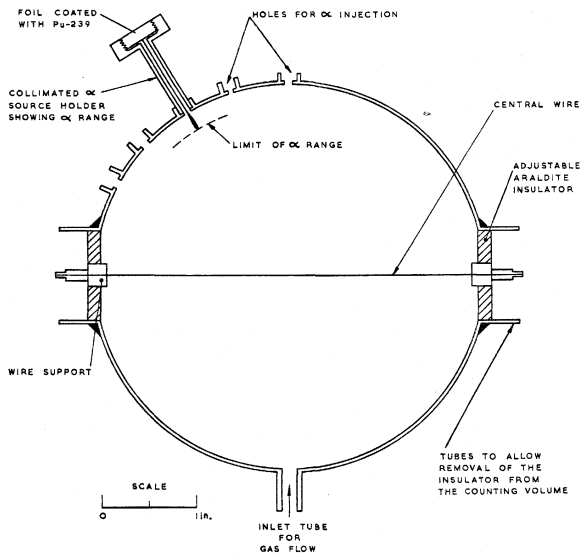


Fig. 1.12 – Compteur proportionnel sphérique testé [43]

Ces derniers ont étudié l'influence de divers paramètres géométriques lors de la conception d'un compteur à protons de recul sphérique. Ils ont mesuré la variation de la valeur de l'impulsion électrique le long du fil anodique en modifiant :

1. le diamètre de l'isolant (déterminé par le diamètre du trou usiné dans la cathode) ;

2. le diamètre du support d'anode ;
3. le diamètre du fil anodique ;
4. la projection du support du fil dans ou en dehors de la sphère ;
5. la position de l'isolant par rapport au bord du compteur.

Les différents éléments géométriques testés sont représentés figure 1.12.

Les résultats donnés dans l'ensemble de courbes de la figure 1.13 représentent la variation de la valeur de l'impulsion le long de l'anode en utilisant des isolants de diamètres différents. Le rapport $\frac{G(x)}{G(0)}$ (où $G(x)$ est le gain gazeux à la distance x et $G(0)$ est le gain au centre du compteur) est exprimé en fonction du rapport $\frac{x}{r}$ où r est le rayon du compteur sphérique. Les autres paramètres géométriques ont été maintenus fixes.

L'étude de la variation de la projection de l'isolant à l'intérieur de la sphère (figures 1.14 et 1.16) a permis de montrer qu'il y a une accumulation de charges positives dans l'isolant lorsque le support de l'isolant et l'isolant lui-même sont projetés à l'intérieur de la sphère. Ce phénomène provoque une réduction de la taille d'impulsion en fonction du temps, le long d'une partie de l'anode allant jusqu'à 0,4 r. Par contre, lorsque l'isolant est retiré de la sphère, la taille d'impulsion reste constante.

L'influence du diamètre de l'anode sur la résolution énergétique a été également mise en évidence en utilisant des protons monoénergétiques. En effet, les figures 1.15 montrent une détérioration de cette résolution lorsque le diamètre de l'anode est modifié à partir d'une valeur optimale. Cela peut être expliqué par une accumulation de charges suffisante pouvant provoquer une réduction locale du champ électrique [44].

Un ensemble de tests a été effectué afin d'optimiser les paramètres géométriques précités, en gardant les isolants retirés du volume de la sphère. Il a permis d'aboutir à un compromis satisfaisant. Les paramètres géométriques retenus sont les suivants :

- *diamètre interne de la sphère* $= D$;
- *diamètre de l'isolant* $= 0{,}257\ D$;
- *diamètre du support d'anode* $= 0{,}114\ D$;
- *diamètre de l'anode* $= 5{,}5 \times 10^{-4}\ D$;
- *projection du support de l'anode à l'intérieur du compteur* $= 0$;
- *distance entre l'isolant et l'extrémité du support de l'anode* $\geq 5{,}5 \times 10^{-2}\ D$.

La figure 1.17 montre les résultats d'irradiation du compteur ainsi conçu. Ce dernier a été rempli avec de l'hydrogène sous une pression de 1 atmosphère et a été exposé à un

faisceau de neutrons de 225 keV (produits par la réaction ^{7}Li(n,p)^{7}Be avec un accélérateur Van de Graaff). Les spectres furent enregistrés avec le faisceau de neutrons respectivement parallèle et perpendiculaire au fil anodique. L'accord de ces spectres entre eux et avec le calcul Monte Carlo montre que la réponse du compteur est indépendant de la direction des particules incidentes. Ce travail a permis d'aboutir à la conception de compteurs proportionnels sphériques à protons de recul de type *SP* entre autres (figure 1.18).

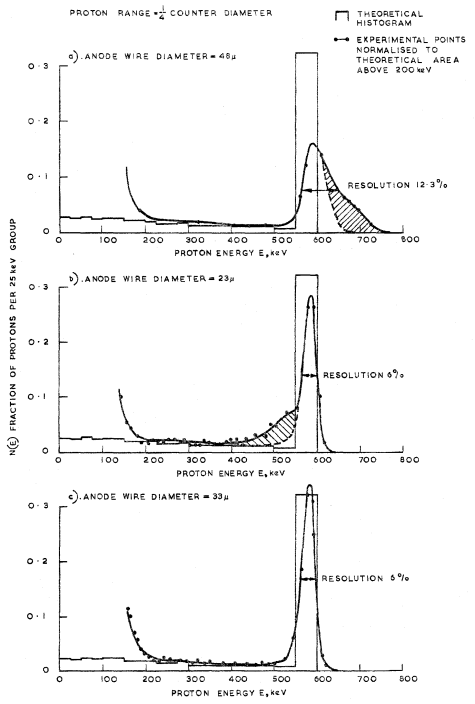

PROTON RANGE = ½ COUNTER DIAMETER
THEORETICAL HISTOGRAM
EXPERIMENTAL POINTS NORMALISED TO THEORETICAL AREA ABOVE 200 keV
a). ANODE WIRE DIAMETER = 46μ
RESOLUTION 12·3%
b). ANODE WIRE DIAMETER = 23μ
RESOLUTION 6%
c). ANODE WIRE DIAMETER = 33μ
RESOLUTION 5%
N(E) FRACTION OF PROTONS PER 25 keV GROUP
PROTON ENERGY E, keV

Fig. 1.13 – Variation de la taille d'impulsion le long de l'axe de l'anode [43]

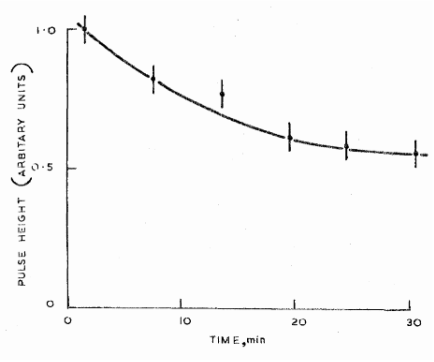


Fig. 1.14 – Influence de la projection de l'isolant sur les performances du compteur . Hauteur de l'impulsion (unités arbitraires) en fonction du temps [45]

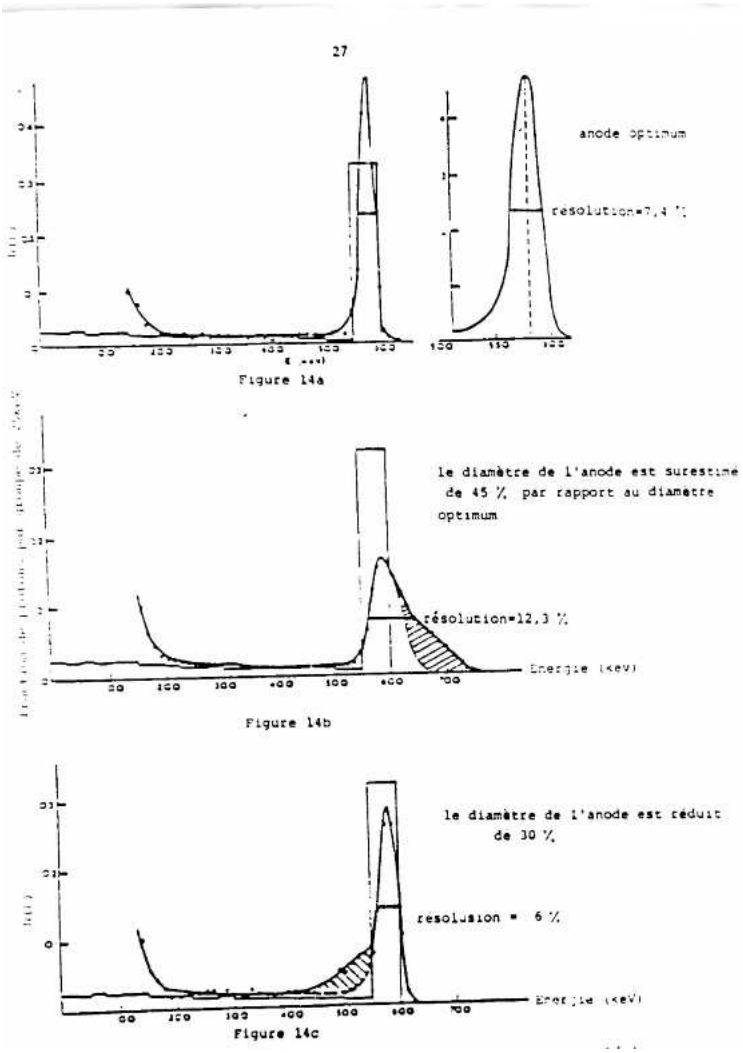


Fig. 1.15 – Influence du diamètre de l'anode sur la résolution du compteur test [43]

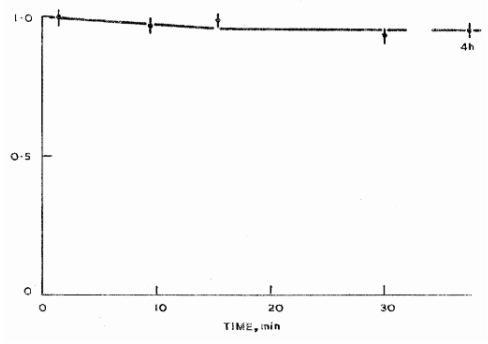


Fig. 1.16 – Influence du retrait de l'isolant sur les performances du compteur Hauteur de l'impulsion (unités arbitraires) en fonction du temps [45]

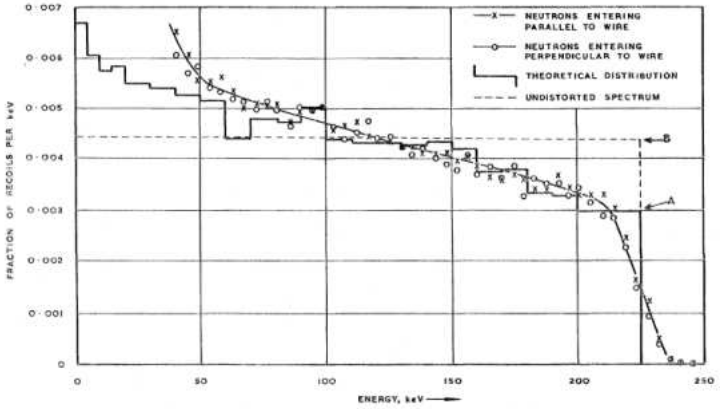


Fig. 1.17 – Spectres de protons de recul obtenus avec des faisceaux de neutrons monocinétiques parallèle ou perpendiculaire à l'anode [43]

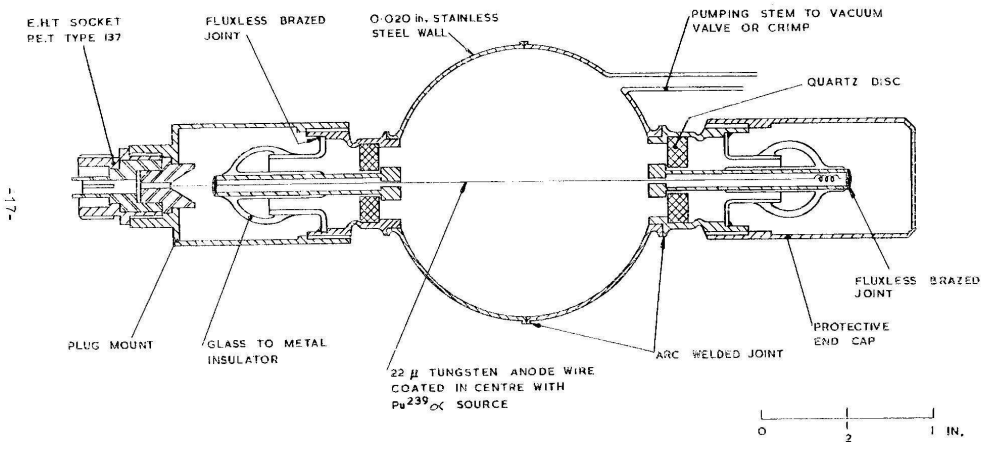


Fig. 1.18 – Compteur SP conçu par Benjamin et *al.* [43]

1.7 Méthode Monte Carlo pour les calculs neutroniques

1.7.1 Généralités

Il est impossible de déterminer de façon exacte l'histoire de *chaque* neutron lors des phénomènes physiques mettant en jeu ces particules. La gamme des phénomènes possibles est connue, mais sur le plan quantitatif, la connaissance se limite aux probabilités ou aux densités de probabilité associées à ces événements.

Ainsi, lors de la traversée d'un milieu par un faisceau de particules, chacune de celles-ci "joue son avenir" à chaque collision. Le pourcentage de particules non absorbées, par exemple, est encore une valeur moyenne. Il est facile, dans ces conditions, de percevoir l'intérêt de construire un jeu agencé de telle manière que les résultats de celui-ci représentent les résultats obtenus avec une expérience physique. Dans la mesure où les lois de probabilité affectées aux phénomènes physiques sont bien connues et où le jeu les fait intervenir de façon correcte, il y a la possibilité de réaliser des expériences numériques très utiles. Il paraît évident que les résultats du jeu n'ont de sens que dans la mesure où le nombre d'épreuves est suffisamment élevé pour que les écarts statistiques soient faibles. Mais d'autre part, la durée matérielle du jeu (et donc du calcul) doit rester dans des limites raisonnables. Selon la problématique, il faudra trouver un compromis entre des incertitudes suffisamment faibles (donc un nombre d'histoires suffisamment élevé) et un temps de calcul raisonnable.

1.7.2 Application de la méthode de Monte-Carlo aux problèmes de neutronique

La plupart des problèmes de neutronique et de détection des neutrons se prêtent à l'édification de jeux bien adaptés à leur résolution. Il s'agit toujours de retracer l'histoire d'un certain nombre de neutrons en *jouant* chaque phase de la vie de ceux-ci, puis d'extraire de la suite d'événements considérés les scores correspondant aux grandeurs microscopiques recherchées.

La méthode de Monte Carlo est adaptée à la résolution de problèmes complexes (interactions de particules nucléaires avec des matériaux variés par exemple) et qui ne peuvent être traités par des codes informatiques utilisant des méthodes déterministes. Les événe-

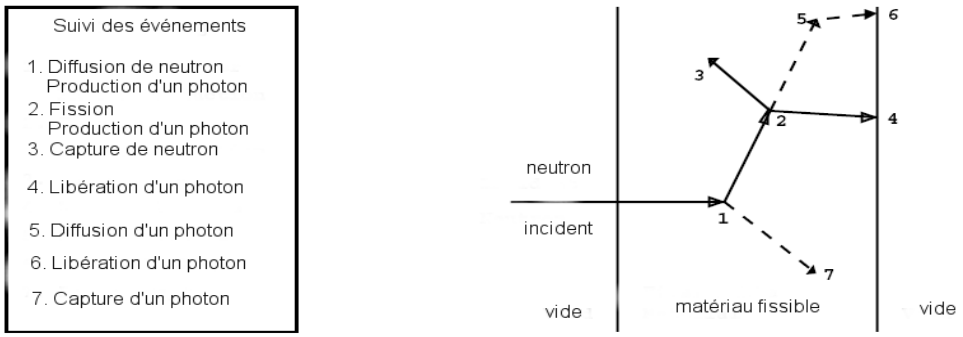


Fig. 1.19 – Séquence d'événements lors de l'interaction d'un neutron avec un matériau fissile [46]

ments probables compris dans un processus sont simulés de façon séquentielle. Les densités de probabilités relatives à ces événements sont statistiquement échantillonnées pour décrire le phénomène complet. La figure 1.19 représente l'histoire aléatoire d'un neutron incident dans une épaisseur de matériau qui peut subir une fission. Des nombres entre 0 et 1 sont sélectionnés aléatoirement pour déterminer si interaction il y a, et en quel endroit elle va se produire, en se basant sur les règles (la physique) et sur les probabilités (données de transport) qui gouvernent les processus et les matériaux concernés. Dans l'exemple (figure 1.19), lors de l'événement 1, le neutron subit une diffusion dans la direction montrée (sélectionnée aléatoirement parmi la distribution physique de diffusion). Un photon est produit et est temporairement enregistré pour toute analyse ultérieure. Lors de l'événement 2, une fission se produit et il en résulte la fin de vie du neutron entrant et donne en sortie deux neutrons et un photon. Un neutron et un photon sont stockés pour analyse ultérieure. Le premier neutron produit par la fission est capturé dans l'événement 3. Le neutron stocké est maintenant retrouvé et lors du tirage d'un nombre aléatoire s'échappe du matériau lors de l'événement 4. Le photon produit par la fission subit une collision lors de l'événement 5 et s'échappe du matériau lors de l'événement 6. Le photon restant, produit lors de l'événement 1, est suivi et subit une capture lors de l'événement 7 [46].

1.7.2.1 Description d'un jeu

Il s'agit de résoudre un problème de neutronique relatif à un système physique dont les dimensions géométriques et la composition chimique sont données et dans lequel un ensemble de sources caractérisées par une densité $S(\overrightarrow{r}, v\overrightarrow{\Omega}, t)$ sont introduites à l'instant

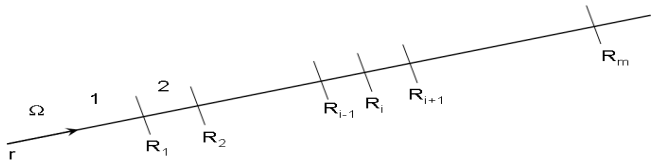


Fig. 1.20 – Neutron traversant plusieurs milieux de nature différente

zéro.

Le jeu peut être décomposé en trois opérations fondamentales.

a) *Opération S*

Cette opération va consister à extraire à un certain instant t_0 un neutron de la source, conformément à la densité de probabilité $S(\overrightarrow{r}, v\overrightarrow{\Omega}, t)$. L'ensemble des tirages effectués fournit donc un neutron présent à l'instant t_0 en un point $\overrightarrow{r_0}$ avec un vecteur vitesse $v_0\overrightarrow{\Omega_0}$.

b) *Opération T*

Cette opération détermine, pour un neutron issu d'une collision ou d'une source, à l'instant t, au point $\overrightarrow{r}$, avec la vitesse $v\overrightarrow{\Omega}$, l'instant t' et le lieu $\overrightarrow{r'}$, soit de la prochaine collision, soit de la sortie du système physique.

La seule inconnue est la distance parcourue R telle que :

$$\overrightarrow{r'} = \overrightarrow{r} + R\overrightarrow{\Omega} \qquad t' = t + \frac{R}{v} \tag{1.21}$$

(1.22)

Le cas le plus fréquent est celui où le neutron issu du point $\overrightarrow{r}$ dans le milieu 1 caractérisé par une section macroscopique totale $\sigma_1 N_1$ et qui peut soit effectuer une collision à l'intérieur de celui-ci ($0 < R < R_1$), soit effectuer une collision dans un des milieux traversés par la demi-droite $\overrightarrow{r} + R\overrightarrow{\Omega}$ (figure 1.20), soit sortir du système ($R > R_m$). Ces milieux sont caractérisés par les sections macroscopiques $\sigma_2 N_2$, $\sigma_3 N_3$, ..., $\sigma_i N_i$, ... et par les valeurs R_2, R_3, ..., R_i, ... et R_m de R.

La probabilité pour que le neutron subisse une interaction dans le milieu 1 est P_1 avec :

$$P_1 = 1 - \exp -\sigma_1 N_1 R_1 \tag{1.23}$$

Dans le milieu i, la probabilité P_i que le neutron subisse une interaction est :

$$P_i = e^{-\int_0^{R_{i-1}} \sigma(R')N(R')dR'} - \exp - \int_0^{R_i} \sigma(R')N(R')dR' \tag{1.24}$$

La probabilité de sortie P_s est :

$$P_s = \exp - \int_0^{R_i} \sigma(R')N(R')dR' \tag{1.25}$$

Le traitement numérique de l'histoire de ce neutron va se faire en tirant un nombre aléatoire x_1.

Si $0 < x_1 \leq P_1$, le neutron subit une interaction dans le milieu 1.

Si $P_1 + P_2 + \cdots + P_{i-1} < x_1 < P_1 + P_2 + \cdots + P_i$, l'interaction se produit dans le milieu i.

Soit encore :

$$1 - e^{-\int_0^{R_{i-1}} \sigma(R')N(R')dR'} < x_1 < 1 - \exp \int_0^{R_i} \sigma(R')N(R')dR' \tag{1.26}$$

Si $1 - P_s < x_1$, le neutron sort du système physique.

Soit encore :

$$1 - \exp - \int_0^{R_m} \sigma(R')N(R')dR' < x_1 \leq 1 \tag{1.27}$$

Ayant ainsi déterminé dans quel milieu le neutron a subi une interaction, il faut calculer la valeur de R correspondante afin de connaître le nouveau vecteur position $\overrightarrow{r'}$ et le

nouveau vecteur vitesse $v\overrightarrow{\Omega'}$ du neutron.

c) *Opération I*

Cette opération décide des conséquences d'une interaction en un point du milieu déterminé précédemment, par un neutron possédant avant le choc une vitesse $v\overrightarrow{\Omega}$. σ_c, σ_{el}, σ_{in} et σ_f sont les sections efficaces relatives à la capture, à la diffusion élastique, à la diffusion inélastique et à la fission ; les probabilités relatives aux divers événements sont respectivement $\frac{\sigma_c}{\sigma}$, $\frac{\sigma_{el}}{\sigma}$, $\frac{\sigma_{in}}{\sigma}$ et $\frac{\sigma_f}{\sigma}$, σ désignant la section efficace microscopique totale. Le tirage d'un premier nombre aléatoire, x_1, décide du type d'interaction.

En cas de capture, le neutron a terminé sa vie.

Pour les autres interactions, un traitement statistique selon la méthode de Monte Carlo du suivi de l'histoire du neutron se réalise. Les détails de ce traitement sont donnés dans la référence [4].

1.7.2.2 Méthodes utilisées dans les calculs neutroniques

Le "jeu" tel que décrit précédemment est pratiquement impossible à réaliser en tant que tel, car le nombre d'opérations à effectuer ou de résultats à emmagasiner est le plus souvent trop élevé pour obtenir les renseignements désirés avec un temps de calcul raisonnable. Quelques procédés permettent de simplifier et d'accélérer les calculs.

a) *Utilisation des symétries*

Introduire le moins de coordonnées possibles est une première étape. Il s'agit de mettre à profit les éventuelles symétries cylindrique et/ou sphérique dans le système et de réduire son degré de liberté donc le temps de calcul.

b) *Suppression du temps*

La plupart des problèmes traités dans le présent travail sont des problèmes stationnaires donc il n'est pas tenu compte du temps.

c) *Artifice des fonctions de poids*

Il faut distinguer soigneusement dans chaque opération fondamentale, la probabilité affectée à un événement et les conséquences de l'événement. Par exemple, lors d'une fission suivie de l'émission de deux neutrons, la probabilité de l'événement est p_2 et le *gain* affecté à l'événement est de 2. Du point de vue physique, compte essentiellement le produit $2p_2$ de la probabilité par le gain.

D'une manière plus générale : "Lors d'un événement, l'espérance mathématique, produit du gain par la probabilité, doit être conservé entièrement par le jeu" [4]. Mais il est possible de modifier la probabilité ou le gain à condition d'en conserver le produit. C'est sur cette idée que se trouve basé l'artifice des fonctions de poids. Pour un événement ayant une probabilité P_i de se réaliser avec un gain G_i, il est donc possible de modifier la probabilité ou le gain à condition d'affecter au neutron en jeu une fonction de poids convenable.

L'intérêt des fonctions de poids réside dans le fait qu'elles permettent de favoriser utilement certains événements dont l'importance du point de vue physique est prépondérante et de négliger les événements de moindre importance (neutron partant dans la direction opposée au détecteur par exemple).

1.7.3 Codes Monte Carlo utilisés

1.7.3.1 Code *GEANT*

Le programme *GEANT* a été originellement conçu par le CERN pour l'étude des expériences de la physique de haute énergie. Ses applications se sont aujourd'hui étendues dans d'autres domaines tels que la biologie, les sciences médicales, la radioprotection et l'astronautique.

Les principales applications de *GEANT* sont les suivantes [47] :

- transport des particules dans une configuration expérimentale pour la détermination de la réponse d'un détecteur ;
- représentation graphique de cette configuration et des trajectoires des particules.
- suivi des particules dans un champ magnétique.

GEANT est écrit en langage C++ avec une orientation objet.

1.7.3.2 Code TRIPOLI

Tripoli (dernière version 4) est un code à 3D mettant en œuvre la méthode Monte Carlo pour simuler le transport des neutrons, photons, électrons et positrons. Il fait suite aux versions précédentes Tripoli-1, Tripoli-2 et Tripoli-3, dont le développement a commencé au début des années 1970. Si les concepts des versions antérieures ont été largement repris, un certain nombre de caractéristiques fondamentales nouvelles (géométrie combinatoire, sections efficaces ponctuelles, calculs de perturbation, parallélisme), ont été incorporées. Le code est utilisé principalement pour quatre domaines d'applications : les études de protection, les études de criticité, les études de coeurs de réacteurs et les études d'instrumentation.

Tripoli-4 a été complètement réécrit avec de nouvelles méthodologies - l'orientation objet et des langages de développement nouveaux - C et C++. Il se divise en six bibliothèques fonctionnelles : une bibliothèque de géométrie (écrite en C), une bibliothèque de lecture des sections efficaces dérivée des routines Fortran d'entrées/sorties du système NJOY, une bibliothèque de gestion de la mémoire (en C++), une bibliothèque de simulation (en C++) et deux bibliothèques dédiées au parallélisme [48].

1.7.3.3 Code de transport MCNP

De façon générale, *MCNP* est un code **M**onte-**C**arlo **N**-**P**articules utilisé pour le transport des neutrons, photons, électrons ou neutrons/électrons/photons couplés [49].

Le code traite une configuration tridimensionnelle arbitraire de matériaux enfermés dans des "cellules" délimitées par des surfaces pré-définies. Il utilise des données nucléaires précises et étendues. Pour les neutrons, toutes les réactions dans une évaluation de sections efficaces donnée (par exemple, ENDF/B-VI) sont prises en compte. Les neutrons thermiques sont décrits par les modèle de *gaz libre* et le modèle $S(\alpha, \beta)$.

Les principales particularités de *MCNP* sont la description puissante de source générale, de criticité ou de surface ; un outil de mise en forme graphique des géométries entrées et des résultats obtenus en sortie ; une collection étendue de techniques de réduction de variance et une structure étendue de comptages (*tallies*).

En ce qui concerne les neutrons, le code traite le domaine d'énergie de 10^{-11} jusqu'à plusieurs GeV.

L'utilisateur crée un fichier d'entrée qui est lu de façon séquentielle par *MCNP*. Ce fichier contient des informations sur le problème organisées selon les parties :

- spécification de la géométrie de la configuration étudiée ;
- description des matériaux et sélection des évaluations de données nucléaires adéquates ;
- localisation et caractéristiques physiques et géométriques des sources ;
- type de réponses ou de comptages désirés ;
- toute méthode de réduction de variance à utiliser pour améliorer l'efficacité de calcul.

L'histoire des particules est complètement suivie par *MCNP*. Au fur et à mesure que le nombre d'histoires suivies augmente, les distributions des particules deviennent mieux connues. Les quantités intéréssant l'utilisateur sont comptabilisées et les incertitudes associées sont déterminées par le code.

1.7.3.4 Code de transport MCNPX

Le code de calcul MCNPX [50] est une extension de MCNP et de LAHET. Le travail d'extension a consisté à prendre en charge le transport d'un nombre beaucoup plus grand de particules et notamment les particules chargées telles que les protons et les particules α. Les librairies de données nucléaires pour les neutrons, les protons et les données photonucléaires jusqu'à 150 MeV ont été ajoutées au code. Les modèles physiques ont été également améliorés ; de nouvelles techniques de réduction de variance ont été incluses dans MCNPX.

1.7.3.5 Interprétation des résultats et estimation de l'erreur statistique dans MCNP et MCNPX

Les comptages dans MCNP sont normalisés par particule source et sont inscrits dans le fichier de sortie avec un deuxième nombre R qui est l'erreur relative estimée. Dans MCNP, les quantités nécessaires à l'estimation de cette erreur sont calculées après chaque histoire Monte Carlo complète (c'est-à-dire le comptage lui-même et son moment secondaire), ce qui permet de tenir compte de toutes les contributions corrélées pouvant influencer une

même histoire. Pour un comptage au comportement correct, R est proportionnel à $\frac{1}{\sqrt{N}}$ où N est le nombre d'histoires (loi des grands nombres). Pour réduire R de moitié, il faut donc quadrupler N. Pour un comptage dont le comportement est incorrect, R peut augmenter lorsque le nombre d'histoires augmente.

L'erreur relative estimée peut être utilisée pour former des intervalles de confiance autour de la moyenne estimée. Le *Théorème de la Limite Centrale* stipule que, lorsque N tend vers l'infini, il y a 68% de chance de trouver le bon résultat dans l'intervalle $\bar{x}(1+R)$ et 95% dans l'intervalle $\bar{x}(1+2R)$. Ces intervalles ne donnent des informations que sur la précision du calcul Monte Carlo. Pour tous les comptages, sauf ceux de type point détecteur, la quantité R doit être inférieure à 0,1 afin de fournir des intervalles de confiance fiables. Les résultats des comptages en points détecteurs ont des moments tertiaires et quaternaires plus importants, donc des valeurs de R inférieures à 0,05 sont requises pour obtenir des intervalles de confiance fiables.

Chapitre 2

Modélisation du ROSPEC en champs neutroniques standards

2.1 L'instrument ROSPEC

2.1.1 Généralités

Le **ROSPEC**, **Ro**tating **Spec**trometer, destiné à la spectrométrie des neutrons a été développé par la société BTI (Bubble Technology Industries, Chalk River, Ontario, Canada), à l'origine pour des applications militaires [51] [52].

Il a fait l'objet de plusieurs évaluations par des laboratoires de métrologie [53] [54] et est désormais utilisé par une vingtaine de groupes de radioprotection du monde entier [55] [56].

Les applications pour lesquelles est utilisé le ROSPEC sont d'ordre dosimétrique et spectroscopique. Dans l'industrie électro-nucléaire, il permet de déterminer les quantités dosimétriques nécessaires à l'établissement de diagnostics en radioprotection, telles que les doses et les débits de dose sur un large domaine d'énergie des neutrons. Le ROSPEC est un instrument qui a été adopté par plusieurs organismes à des fins militaires, entre autres, pour des applications au niveau des postes de travail.

L'instrument est également largement utilisé dans le domaine de retraitement des déchets radioactifs. Il se révèle d'une grande utilité dans la caractérisation des sources

neutroniques.

Il est à signaler que le ROSPEC n'est pas un instrument de référence pour l'instant mais les investigations actuelles et futures tendent vers cet objectif. Il s'agit de ne pas en faire un simple débitmètre mais bien un spectromètre muti-détecteurs fiable avec des performances en terme de résolution et de précision appréciables.

2.1.2 Description du ROSPEC

Dans sa version initiale, l'instrument a été conçu pour fournir la distribution en énergie de la fluence et de l'équivalent de dose neutroniques entre 50 keV et 4,5 MeV [51]. Dans sa version plus récente, le ROSPEC est composé de 6 compteurs proportionnels sphériques et couvre le domaine d'énergie 0,025 eV à 4,5 MeV. À cet ensemble de détecteurs sont ajoutés les pré-amplificateurs, les amplificateurs, les codeurs, les alimentations haute tension et les systèmes de communication. Un PC portable avec extension permet l'acquisition des données, le stockage et l'analyse [57].

Chacun des compteurs est dévolu à une gamme d'énergie de neutrons propre. Les six compteurs sont montés sur une plate-forme rotative circulaire de 40,6 cm de diamètre, qui permet à chacun des compteurs de décrire une même orbite. Une vue générale de l'appareil est présentée figure 2.1.

Un plan géométrique du ROSPEC est donné figure 2.2.

Les compteurs proportionnels sont du type SP2 [43] et SP6. Leurs caractéristiques sont les suivantes :

- Un compteur à proton de recul (diamètre 6 pouces soit 15,24 cm) sensible aux neutrons d'énergie comprise entre 1 et 4,5 MeV. Il est rempli avec un mélange gazeux de 90% d'argon et de 10% méthane de pression totale 5 atm. L'argon est ajouté afin de réduire les instabilités et les pertes de multiplication gazeuse et de proportionnalité [58] [59]. C'est le gaz de quenching le plus utilisé car il est de moindre coût par rapport aux autres gaz. Ce compteur sera appelé *compteur 3* ou SP6 dans la suite du travail.
- Un compteur à proton de recul (de type SP2 de diamètre 2 pouces soit 5,08 cm) sensible aux neutrons d'énergie comprise entre 400 keV et 1,5 MeV. Il est rempli avec 10 atm (soit $1{,}013 \times 10^6$ Pa) de H_2 et est dénommé *compteur 2* ou SP2-10.

FIG. 2.1 – Vue d'ensemble de l'instrument ROSPEC

- Un compteur à proton de recul (type SP2) sensible aux neutrons d'énergie comprise entre 150 et 700 keV. Il est rempli avec 4 atm. (soit 4,042 $\times$ 10^5 Pa) de H_2 et est dénommé *compteur 1* ou SP2-4.
- Un compteur à proton de recul (type SP2) sensible aux neutrons d'énergie comprise entre 50 et 250 keV. Il est rempli avec 0,75 atm (7,5975 $\times$ 10^4 Pa) de H_2 et est dénommé *compteur 0* ou SP2-1.
- Un compteur rempli de ^{3}He gazeux (type SP2) dont la paroi externe est couverte d'une couche de ^{10}B, sensible aux neutrons épithermiques (énergie comprise de 1 eV à 10 keV). Il est dénommé *compteur 5*.
- Un compteur rempli de ^{3}He gazeux (type SP2) sensible aux neutrons thermiques (énergie comprise de 0,025 à 1 eV), dénommé *compteur 4*.

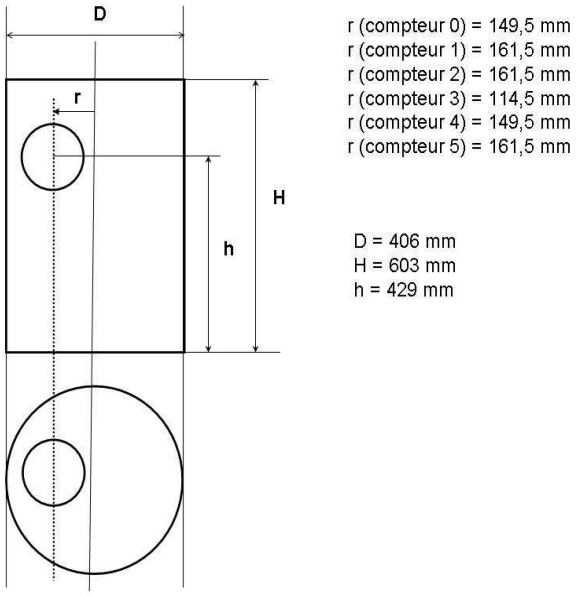

D
r
H
h
r (compteur 0) = 149,5 mm
r (compteur 1) = 161,5 mm
r (compteur 2) = 161,5 mm
r (compteur 3) = 114,5 mm
r (compteur 4) = 149,5 mm
r (compteur 5) = 161,5 mm
D = 406 mm
H = 603 mm
h = 429 mm

Fig. 2.2 – Plan géométrique du ROSPEC

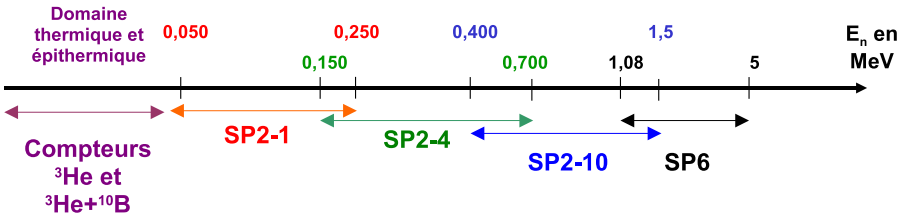


Fig. 2.3 – Domaines d'énergie auxquels sont sensibles les différents compteurs du ROSPEC

Il existe des domaines d'énergie de recouvrement entre deux compteurs successifs (comme entre les compteurs 0 et 1). La figure 2.3 montre ces domaines de recouvrement.

L'ensemble tourne à une vitesse régulière de 4 tours/min. Les compteurs sont positionnés uniformément et sont alignés verticalement de telle sorte que leur centre respectif soit dans le même plan. Ce plan est parallèle à la plate-forme rotative et est situé à 19,0 $\pm$ 0,1 cm au-dessus de cette plate-forme.

Globalement, lorsque le capot en aluminium est en place, le ROSPEC se présente sous la forme d'un cylindre de 40,5 cm de diamètre, de 60 cm de hauteur et dont la masse est d'environ 20 kg.

2.1.3 Choix des compteurs. Caractéristiques.

Le spectromètre ROSPEC est basé sur le principe de la détection des neutrons par des compteurs proportionnels gazeux remplis d'hydrogène, de méthane ou d'hélium-3.

2.1.3.1 La partie des neutrons rapides

Pour la détection des neutrons rapides, il faut choisir plusieurs compteurs proportionnels remplis d'hydrogène à différentes pressions.

Dans un champ mixte de neutrons et de photons, deux types d'interactions peuvent se produire :

- Les neutrons incidents diffusent sur les noyaux d'hydrogène du milieu gazeux et produisent des protons de recul. Ces protons de recul vont ioniser le milieu gazeux le long de leur parcours et produire des électrons (cf. chapitre 1). Le signal électrique obtenu est ainsi proportionnel à l'énergie du proton de recul et non à celle du neutron incident.
- Les photons incidents interagissent avec les électrons de la paroi du compteur par effet Compton. En effet, c'est le phénomène prédominant dans ce domaine d'énergie (figure 2.4). En ionisant le gaz de remplissage, ils produisent un signal électrique certes plus faible que celui induit par les protons de recul, mais qui peut perturber le signal total en sortie.

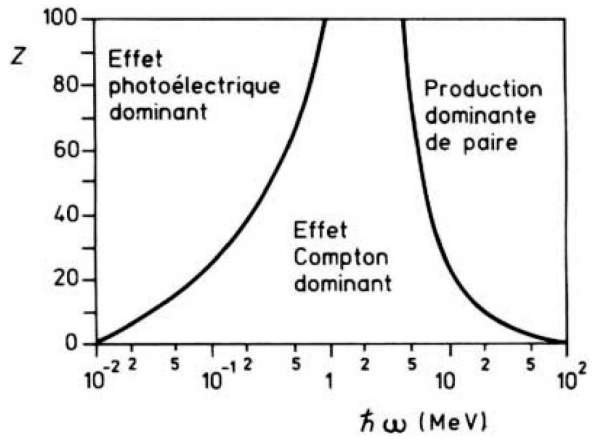


Fig. 2.4 – Interactions des photons avec la matière en fonction de l'énergie

Le domaine d'énergie de sensibilité de chaque compteur est donné par les énergies de

protons de recul mesurables dans un gaz de pression donnée. En effet, la borne supérieure du domaine d'énergie est limitée par une distorsion appelée "effet de paroi". Ce point particulier sera abordé dans le chapitre 3. La borne inférieure du domaine d'énergie est limitée par la perturbation des photons γ notamment, comme décrit précédemment.

Ainsi, pour couvrir la gamme d'énergie des neutrons rapides, le ROSPEC est équipé de quatre compteurs qui présentent deux à deux un large domaine de recouvrement en énergie. Ces recouvrements permettent de s'affranchir de l'influence des photons, sauf pour le compteur couvrant la gamme d'énergie des neutrons la plus basse.

De ce fait, en combinant le diamètre des compteurs, la nature et la pression du gaz de remplissage, les quatre compteurs du ROSPEC couvrent une très large gamme d'énergie dans le domaine des neutrons rapides comparativement à des instruments existants.

Les caractéristiques précises de ces compteurs sont reportées dans le tableau 2.1 .

Compteur proportionnel	compteur 0	compteur 1	compteur 2	compteur 3
Gamme d'énergie (MeV)	0,05 - 0,25	0,15 - 0,7	0,4 - 1,5	1,2 - 4,5
Diamètre (cm)	5,08	5,08	5,08	15,24
Gaz de remplissage	H_2	H_2	H_2	10% CH_4 + 90% Ar
Pression (hPa)	758 ± 1%	4054 ± 1%	10135 ± 1%	5061 ± 1%
Haute tension appliquée (V)	1376	2607	4504	3098
Résolution énergétique	15%	10%	10%	12%

Tab. 2.1 – Caractéristiques des détecteurs du ROSPEC couvrant le domaine d'énergie 50 keV à 4,5 MeV

En ce qui concerne le premier compteur, l'énergie minimale des neutrons mesurable (sans dispositif électronique de discrimination n/γ) est de 50 keV [60].

Le compteur 3, en raison de son plus grand diamètre et de son remplissage avec du méthane, permet d'arrêter complètement les protons de recul induits par les neutrons de 4,5 MeV. Cela s'explique par le fait que le parcours des protons est 3,5 fois plus court

dans le méthane que dans l'hydrogène [61].

2.1.3.2 La partie des neutrons thermiques et épithermiques

La spectrométrie des neutrons thermiques et intermédiaires (ou épithermiques) est réalisée grâce à deux compteurs proportionnels sphériques remplis de ^{3}He gazeux. Ces détecteurs n'utilisent pas les protons de recul pour la détection des neutrons mais mettent à profit les avantages de la réaction nucléaire exothermique ^{3}He(n,p)^{3}H [62]. Cette réaction a une valeur Q de 764 keV (figure 2.5).

Le compteur proportionnel 4 détecte les neutrons thermiques grâce à la section efficace élevée de la réaction ^{3}He(n,p)^{3}H (5330 barns) dans ce domaine d'énergie.

Le compteur 5 a été conçu pour la détection des neutrons intermédiaires. Sa fonction de réponse a été modifiée pour diminuer sa sensibilité aux neutrons thermiques. Cette modification a consisté à ajouter un blindage de ^{10}B spécialement conçu au compteur afin d'absorber les neutrons thermiques (voir figure 2.6). L'épaisseur de la couche est telle que l'absorption des neutrons d'énergie inférieure à 1 eV soit totale et que la réponse du compteur soit optimale pour la gamme d'énergie désirée, à savoir de 1 eV à 10 keV.

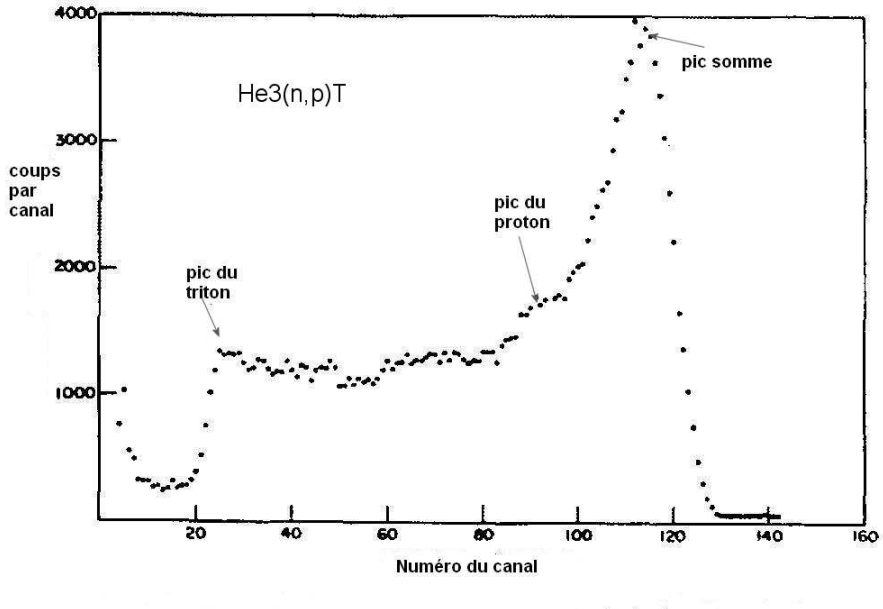


FIG. 2.5 – Distribution d'impulsions résultant de la capture du neutron par l'hélium 3 gazeux

Les caractéristiques des deux compteurs SP2 à ^{3}He sont données dans le tableau 2.2.

Compteur proportionnel	compteur 4	compteur 5
Gamme d'énergie	thermique 0,01 à 1 eV	1 eV à 10 keV
Diamètre (cm)	5,08	5,08
Gaz de remplissage	^{3}He + Kr	^{3}He + Kr
Pression (hPa ^{3}He + Kr)	76 + 689	496 + 1655
Haute Tension appliquée	810	1137

Tab. 2.2 – Caractéristiques des détecteurs du ROSPEC couvrant le domaine des neutrons thermiques

La discrimination neutron/gamma dans ce type de compteur se fait simplement grâce à un seuil électronique. En effet, les impulsions engendrées par les photons sont nettement inférieures à celles dues à l'énergie déposée (correspondant à 764 keV) par les neutrons thermiques dans le spectre des impulsions mesurées.

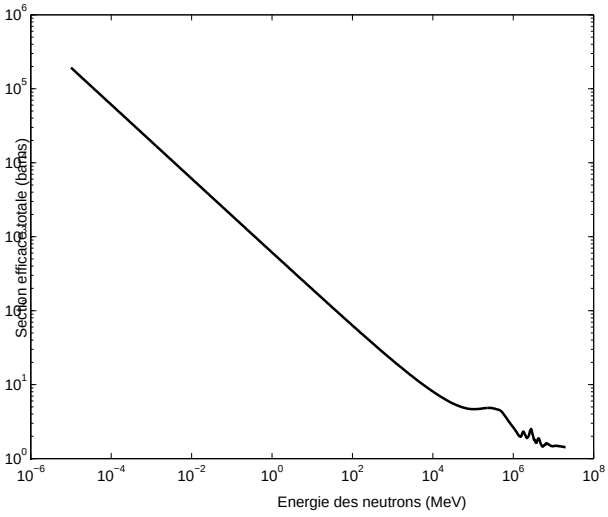


Fig. 2.6 – Section efficace totale d'interaction du neutron pour le bore 10

2.1.4 Étalonnage et intercomparaisons passés

2.1.4.1 Étalonnage fait par le constructeur

L'étalonnage du ROSPEC a été réalisé par le constructeur BTI [63]. Les compteurs proportionnels à protons de recul ont été étalonnés avec des faisceaux de neutrons monocinétiques produits par un accélérateur de type Van de Graaff situé à Ottawa au DREO

(Recherche et Développement pour la Défense au Canada). Chaque détecteur a été ainsi exposé à plusieurs faisceaux de neutrons monoénergétiques d'énergies différentes.

Pour l'étalonnage en énergie, des mesures ont permis, pour chaque compteur, de déterminer par régression linéaire les deux paramètres caractéristiques de la relation linéaire qui relie l'énergie des protons de recul à l'amplitude des impulsions de la distribution mesurée.

2.1.4.2 Test du ROSPEC

Des mesures de spectres de fluence neutronique ont été faites avec un exemplaire du ROSPEC dans un champ neutronique généré par une source de ^{252}Cf modérée à l'eau lourde par Nunes et Faught [54]. Des facteurs d'étalonnage ont été déterminés lors de cette étude. Il s'agit de l'étalonnage énergétique G et du facteur de décallage en énergie noté EB. EB est défini comme étant le nombre de canaux qu'il faudrait ajouter au nombre de canaux enregistré pour obtenir le nombre de canaux réel (qui est proportionnel à la taille d'impulsion) [64]. La relation suivante est utilisée dans le processus de traitement des impulsions mesurées :

$$E = G(N + EB) \tag{2.1}$$

où E est l'énergie en MeV correspondant au canal enregistré N. Un ensemble de numéros de canaux est obtenu pour des distributions mesurées de taille d'impulsions des protons en utilisant un certain nombre de faisceaux de neutrons monocinétiques. Le graphique représentant les énergies de ces neutrons en fonction du numéro du canal doit être linéaire avec une pente de G et une ordonnée à l'origine de $G \times EB$. L'équation 2.1 peut être réecrite comme suit :

$$E = G(N + BB) + E_0 \tag{2.2}$$

où $(N + BB)$ est le numéro de canal enregistré corrigé du "décallage électronique", BB. Ce paramètre est déterminé en utilisant un générateur d'impulsions calibré et donne le numéro de canal correpondant à la taille d'impulsion zéro. E_0 représente un décallage en énergie et correspond à la non-proportionnalité entre ionisation et taille d'impulsion. Pour un détecteur parfait, pour lequel il n'y a ni impuretés dans les gaz de remplissage, ni d'effets de paroi ni de champ électrique, et pour lequel l'énergie dépensée pour créer une paire d'ions sur le domaine d'énergie considéré est constante, E_0 est nulle. Pour les compteurs remplis d'hydrogène utilisés pour mesurer les neutrons entre 10 keV et 1 MeV, E_0 a été mesuré comme étant < 2 keV [64] [65], ce qui est négligeable pour les énergies considérées. D'autres auteurs trouvent des valeurs différentes comme -7,7 keV et 15,7 keV

[66]. La figure 2.7 montre un graphe d'un ensemble de trois énergies de neutrons en fonction de $N + BB$ pour le détecteur 2 du ROSPEC. Les énergies des neutrons sont comprises entre 500 et 730 keV. La courbe en trait plein est un lissage linéaire à ces données telle que $E_0 \approx 0$, $BB = -13,6$ canaux et $G = 7,85 \times 10^{-3}$ MeV.canal^{-1}.

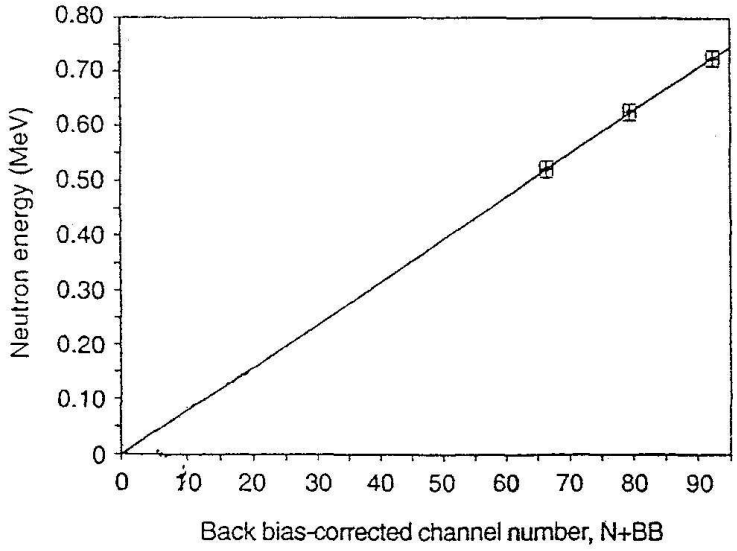


Fig. 2.7 – Données acquises dans les mesures avec les neutrons monocinétiques sur le compteur 2 du ROSPEC. Energie des neutrons en fonction de N+BB [54]

2.1.4.3 Étalonnage du ROSPEC auprès d'énergies ISO

À des fins d'étalonnages, des mesures ont été faites avec le système spectroscopique ROSPEC auprès de faisceaux primaires de neutrons monocinétiques (PTB [1], Allemagne) [53]. Ces mesures couvrent le domaine d'énergie des neutrons de 144 keV à 14,8 MeV, en adoptant un découpage énergétique ISO. Les énergies concernées sont les suivantes : 144 keV, 565 keV, 1,2 MeV, 2,5 MeV, 5 MeV et 14,8 MeV [67]. Des mesures supplémentaires ont été faites à 100 keV, 842 keV, 4,2 MeV, 13,89 MeV et 14,3 MeV. La production de neutrons d'une énergie donnée s'accompagne d'un contrôle rigoureux de cette énergie par le PTB, notamment en utilisant un spectromètre à temps de vol. La mesure du flux des neutrons monocinétiques produits, quant à elle, a été réalisée grâce à des compteurs proportionnels gazeux et un téléscope à protons de recul [68]. La contribution des neutrons diffusés par l'air a été prise en compte en procédant à des mesures avec un cône d'ombre approprié.

[1] Physikalisch Technischen Bundesanstalt

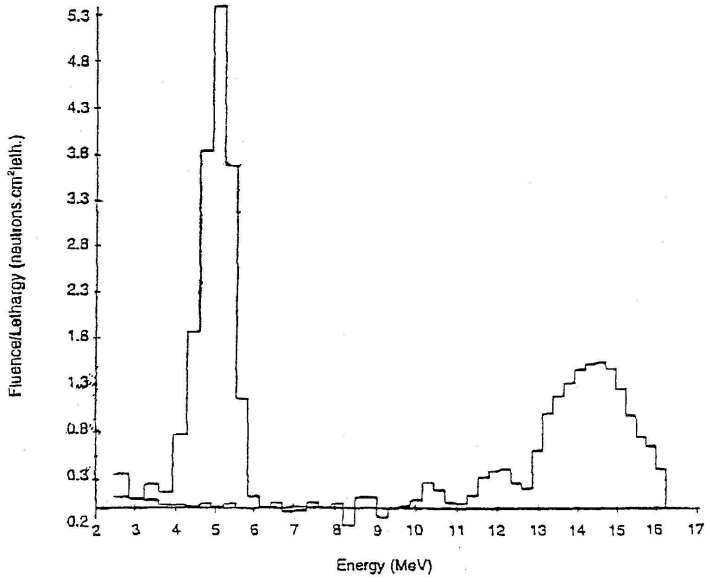


FIG. 2.8 – Spectres mesurés des neutrons monocinétiques aux énergies nominales 5 MeV et 14,3 MeV [53]

Les figures 2.8 et 2.9 montrent les spectres de neutrons déconvolués mesurés par le ROSPEC pour diverses énergies de neutron. L'énergie des neutrons mesurée E est déterminée en calculant le centre de la distribution d'énergie de la façon suivante :

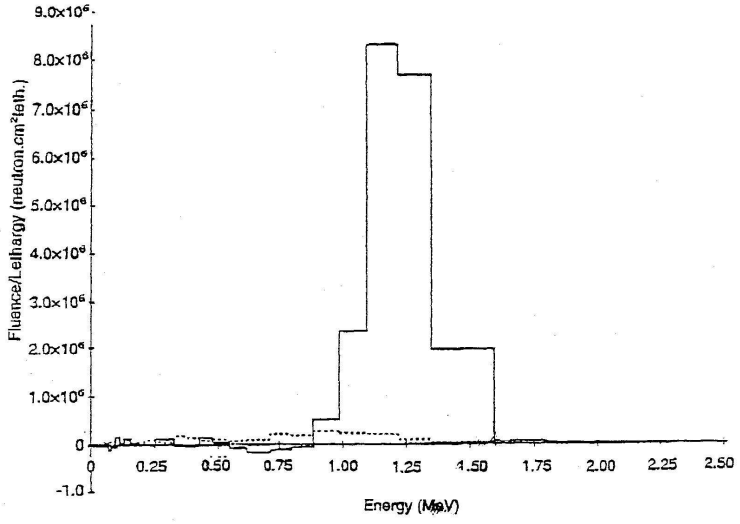


FIG. 2.9 – Spectre mesuré pour des neutrons monocinétiques d'énergie nominale de 1,2 MeV [53]. La courbe en pointillés représente le spectre diffusé par l'environnement

$$E = \frac{\sum_i E_i \Delta E_i F_i}{\sum_i \Delta E_i F_i} \tag{2.3}$$

avec E_i : énergie moyenne du canal i ; ΔE_i : largeur du canal i ; F_i : fluence neutronique dans le canal i.

Le tableau 2.3 donne les énergies nominales des neutrons, les énergies des neutrons mesurées par le spectromètre ROSPEC avec la largeur relative de pic correspondante. Les énergies mesurées sont en bon accord avec les énergies nominales en tenant compte de la résolution énergétique du spectromètre qui est donnée par la largeur à mi-hauteur du pic. Les neutrons d'énergie 14,8 MeV ont été mesurés conjointement par le ROSPEC et un Scintillateur plastique SSS. Il est à noter que la résolution énergétique du ROSPEC dépend de l'énergie et vaut entre 5 et 17% (tableau 2.3) excepté pour 100 keV où elle vaut 31% [53].

Spectromètre	Énergie nominale (MeV)	Énergie mesurée (MeV)	Largeur de pic (%)
ROSPEC	0,100	0,1	31
ROSPEC	0,144	0,15	11
ROSPEC	0,565	0,61	10
ROSPEC	0,842	0,85	17
ROSPEC	1,2	1,18	10
ROSPEC	2,5	2,56	5,5
ROSPEC + SSS	4,2	4,04	14

Tab. 2.3 – Énergies des neutrons mesurées avec le ROSPEC et largeurs relatives de pics des spectres mesurés correspondants [53]

Un travail d'étalonnage a été également réalisé pour la fluence des neutrons. Le tableau 2.4 résume les résultats des mesures de fluence neutronique acquises avec le ROSPEC (éventuellement couplé avec le SSS) comparées aux fluences standards déterminées par le laboratoire primaire PTB. Les fluences mesurées par le ROSPEC sont systématiquement supérieures par rapport aux fluences standards du PTB, sauf pour 4,2 MeV où la fluence est déterminée en utilisant les spectres mesurés par deux instruments.

Les mesures avec le cône d'ombre montrent que la fluence due aux neutrons diffusés représente 2 à 11% de la fluence neutronique totale mesurée par le ROSPEC. Ce taux relativement important peut être expliqué par les dimensions assez conséquentes du ROSPEC. Les incertitudes statistiques ont été déterminées grâce à des mesures répétées à 0,100 MeV, 0,144 MeV, 0,565 MeV et 13,89 MeV. Elles sont comprises entre 1% et 3%.

L'ensemble de ces travaux a permis de conclure que le ROSPEC détecte correctement les énergies des neutrons nominales avec une erreur ne dépassant pas 8%, hormis pour 100 keV où l'écart entre l'énergie mesurée et l'énergie nominale atteint 10%.

Énergie de neutrons nominale (MeV)	Distance entre le détecteur et la source (cm)	Fluences neutroniques mesurées ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)	Fluences neutroniques de référence PTB ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)	Écart relatif entre la référence et la mesure (%)
0,100	100	372,7 ± 7,7	345,0 ± 20,3	8,0
0,144	100	456,7 ± 3,9	428,0 ± 21,8	6,7
0,565	220	230,8 ± 1,4	218,3 ± 11,4	5,7
0,842	220	252,3	247,8 ± 14,5	1,8
1,2	220	408,7	391,0 ± 15,9	4,5
2,5	220	912,3	861,9 ± 30,9	5,9
4,2	220	82,3	89,2 ± 3,5	-7,7
5,0	100	2172,5	2079,5 ± 79,2	4,5

Tab. 2.4 – Comparaison des valeurs de fluences neutroniques mesurées par l'instrument ROSPEC avec les valeurs de fluences neutroniques de référence (PTB) [53]

2.1.4.4 Test du ROSPEC avec des sources standards

Le ROSPEC a fait l'objet de tests dans quatre champs neutroniques de référence au NIST [2] (États-Unis) [69]. Les champs sont générés par une source de ^{252}Cf qui peut être soit nue, soit modérée par D_2O, H_2O ou par Fe. Pour chaque champ neutronique, les spectres mesurés entre 60 keV et 4,5 MeV sont comparés avec des spectres calculés.

La source de fission spontanée ^{252}Cf et la source de ^{252}Cf modérée avec D_2O (plus un écran de cadmium) sont des sources standards internationales [67]. On estime que le spectre de fluence neutronique de la première est connu avec une incertitude inférieure à 5% entre 35 keV et 200 keV et inférieure à 2% entre 200 keV et 8 MeV [70]. Le spectre neutronique de la source de ^{252}Cf modérée avec D_2O a été calculé par différents laboratoires [71] [72] et les calculs sont en bon accord.

La diffusion des neutrons par l'environnement de mesure a été évaluée et cette fluence représente 30% de la fluence neutronique totale dans les conditions d'exposition. Ces

[2] National Institute of Standards and Technology

neutrons diffusés ont un effet plus important dans la partie de basse énergie du spectre que dans le reste du domaine énergétique.

Pour la source de ^{252}Cf nue, les mesures sont en bon accord avec les valeurs calculées. La fluence déterminée par le ROSPEC est plus importante que la fluence standard au-delà de 1 MeV et moins importante entre 500 keV et 1 MeV. Il est à noter qu'entre 60 keV et 80 keV, la fluence mesurée vaut le double de celle calculée. Comme le spectre de fluence de la source de ^{252}Cf est considéré comme étant très bien connu [9], ce désaccord serait attribué à la mesure.

Les caractéristiques spectroscopiques du champ neutronique produit par une source de ^{252}Cf modérée avec D_2O (notamment les résonances de l'oxygène à 400 keV et 1 MeV) sont très bien reproduites par les mesures faites avec le ROSPEC. Il n'en reste pas moins que les valeurs mesurées sont supérieures aux valeurs calculées du spectre de fluence. Cela serait peut être dû à une erreur de normalisation [69].

Les rapports $\frac{fluence\ mesurée}{fluence\ calculée}$ ont été déterminés afin de savoir si les désaccords observés sont systématiques ou s'ils sont spécifiques à un type de source donné. Pour la source de ^{252}Cf modérée avec l'eau lourde, les rapports semblent supérieurs à 1, ce qui n'est pas le cas pour les trois autres sources mesurées. Pour ces dernières, les spectres mesurés montrent des maxima et minima localisés à des énergies différentes. De ce fait, la corrélation entre ces trois sources tend à suggérer qu'il existe un décallage systématique pour les signaux de sortie du ROSPEC, probablement en lien avec les facteurs de calibration affectés à chaque compteur qui compose l'instrument. Les rapports sont proches de l'unité au voisinage de 100 keV. Ce rapport augmente lorsque l'énergie décroît dans chaque domaine d'énergie propre à chaque détecteur. Dans le domaine d'énergie où deux compteurs successifs se "recouvrent", ce rapport a tendance à diminuer : en effet, le nombre de coups expérimentaux constitue la moyenne des nombres de coups mesurés par les deux compteurs couvrant le domaine d'énergie en question [69]. Des études paramétriques supplémentaires ont été menées par Schwartz et *al* [69]. Elles avaient pour but de déterminer quels sont les facteurs susceptibles d'influer sur l'utilisation du ROSPEC. Elles portèrent sur :

1. les effets des taux de comptage élevés ;
2. l'influence de la présence ou non du couvercle cylindrique en aluminium sur le ROSPEC ;
3. l'effet de la position d'un compteur ;
4. la reproductibilité des mesures avec le ROSPEC en général.

1. Les *effets d'accumulation des signaux* à fort taux de comptage sont à considérer avec attention lors de l'utilisation du ROSPEC. Ces effets devraient être plus importants à haute énergie car ce domaine est couvert par le compteur numéro 3 (SP6) qui présente un *temps mort* plus important que les autres compteurs. Des mesures à différents taux de comptage sont entreprises et sont comparées entre elles. Au-delà de 1 MeV, là où des effets d'empilement de signaux sont attendus, les différences entre les spectres mesurés à fort et faible taux de comptage sont minimes (seulement quelques pourcents). Sur la base de ces données, le ROSPEC peut être considéré comme opérationnel jusqu'à un débit de dose de 3,0 $mSv.h^{-1}$ sans qu'il n'y ait d'effets d'accumulation de signaux. Les divergences constatées dans la partie de basse énergie des spectres sont plus difficiles à expliquer. Le problème provient en partie de la statistique de comptage car peu de neutrons sont émis dans cette région.

2. Lors de son utilisation normale, l'instrument est totalement recouvert avec un couvercle. Des mesures ont été réalisées avec une source de californium nue à 150 cm pour étudier l'influence de la présence du couvercle. Le rapport $\frac{fluence\ mesurée\ avec\ couvercle}{fluence\ mesurée\ sans\ couvercle}$ a été déterminé et est proche de l'unité sauf dans la région 80 - 100 keV (effets statistiques) [69]. La présence du couvercle ne semble pas avoir d'incidence sur les spectres mesurés.

3. Afin d'étudier l'influence de la position d'un compteur donné, une mesure a été faite avec une source de californium modérée. L'expérience a consisté à séparer le compteur sensible à la partie basse énergie du reste du système spectroscopique. Cela nécessite que le couvercle soit enlevé et que la rotation de l'appareil soit stoppée. Les spectres mesurés avec le compteur en place (et le ROSPEC tournant) et le compteur déplacé (ROSPEC stationnaire) sont en assez bon accord en tenant compte des effets de la rotation du ROSPEC entre les deux configurations. Il aurait été préférable *a posteriori* de faire les deux mesures avec le ROSPEC en position stationnaire.

4. Des tests de reproductibilité ont été accomplis avec deux sources de ^{252}Cf modérées avec du fer. Les résultats montrent que la reproductibilité du ROSPEC est remarquablement bonne, en sachant que les écarts observés sont d'ordre statistique [69].

2.1.5 Problématique

L'étude du mode de réponse du système spectroscopique ROSPEC nécessite de se pencher sur plusieurs aspects inhérents aux systèmes multi-détecteurs. Le ROSPEC couvre un domaine d'énergie très large grâce à ses 6 compteurs proportionnels. L'étude devra

porter sur l'ensemble de ce domaine et va consister à modéliser le comportement spectroscopique de l'appareil en faisant appel au code de transport de particules MCNP version 4c [49]. Cette modélisation s'inscrit dans le cadre d'un exercice d'inter-comparaison entre trois appareils de type ROSPEC qui a été effectuée courant mars 2003 [73]. Les mesures sont effectuées dans les champs neutroniques produits par des sources standards ISO ^{252}Cf nue, ^{252}Cf modérée avec D_2O et ^{241}AmBe.

La première étape va consister à étudier la fluence spectrale des neutrons dans chaque compteur proportionnel dans le domaine d'énergie des neutrons auquel il est sensible. Il est important de noter que le mode opératoire par défaut du ROSPEC est la rotation. Il est donc essentiel de déterminer l'effet de cette rotation sur les spectres de neutrons mesurés et cela pour chaque compteur proportionnel composant l'appareil. L'objectif est de déterminer la position exacte du centre effectif de détection du système spectroscopique.

Les 6 compteurs proportionnels du ROSPEC sont disposés sur un plateau dont le diamètre est de 40,6 cm. Cela signifie que la distance qui les sépare est relativement faible. Se pose alors le problème de savoir si cette proximité entre les détecteurs engendre une quelconque perturbation sur la réponse spectroscopique de l'instrument. Pour traiter pareille problématique, il est possible d'utiliser le code MCNP pour quantifier d'éventuelles perturbations. En effet, accéder aux quantités caractérisant les perturbations mutuelles nécessiterait de mettre en place un dispositif complexe et difficilement exploitable sans parler du temps de mesure nécessaire considérable. D'où l'intérêt de faire appel à la simulation numérique qui permet de traiter un nombre important de configurations avec des temps raisonnables et une précision satisfaisante.

La dernière étape concerne la modélisation de l'instrument dans son environnement de mesure. Le modèle tiendra alors compte de la rotation de l'appareil et de l'influence entre les différents détecteurs de l'appareil.

2.2 Méthodes de modélisation

2.2.1 Choix du modèle pour un compteur proportionnel gazeux

Les éléments essentiels du compteur proportionnel qui ont été retenus pour la simulation numérique sont les suivants :

- la paroi du compteur en acier inoxydable d'épaisseur 0,5 mm (pour les 6 compteurs du ROSPEC) ;
- l'anode centrale de diamètre de 22 μm en tungstène ;
- le mélange gazeux qui est propre à chaque compteur ;
- la coquille en acier inox du compteur de diamètre 2 pouces (soit 5,08 cm) pour cinq compteurs (les numéros 0, 1, 2, 4 et 5) et de diamètre 6 pouces (soit 15,24 cm) pour le compteur SP6 (numéro 3). Elle constitue la cathode du compteur proportionnel.

Les autres éléments tels que le support de l'anode et les isolants ne sont pas modélisés dans un premier temps. L'électronique associée à l'instrument ROSPEC n'est pas incluse dans la simulation numérique dans un but de simplification.

Le modèle géométrique en trois dimensions utilisé pour les calculs Monte Carlo est une sphère remplie de gaz, traversée par une anode de tungstène, telle que représentée sur la figure 2.10.

2.2.2 Quantités spectroscopiques et dosimétriques calculées

Les grandeurs radiométriques globales (nombre de particules, flux de particules, énergie radiante, flux énergétique) caractérisent la source. Toutefois, la détermination de ces grandeurs est insuffisante pour apprécier les effets produits dans un milieu donné dont l'évaluation nécessite l'utilisation de concept de rayonnement.

Les grandeurs radiométriques locales caractérisent un champ de rayonnement. En effet, pour définir un champ de rayonnement en un point P, on considère une petite sphère Σ centrée sur P de section diamétrale ΔS. La limite du rapport de toute grandeur radiométrique sur ΔS, lorsque ΔS tend vers 0, caractérise *localement* le champ (fluence particulaire, débit de fluence particulaire, débit de fluence énergétique).

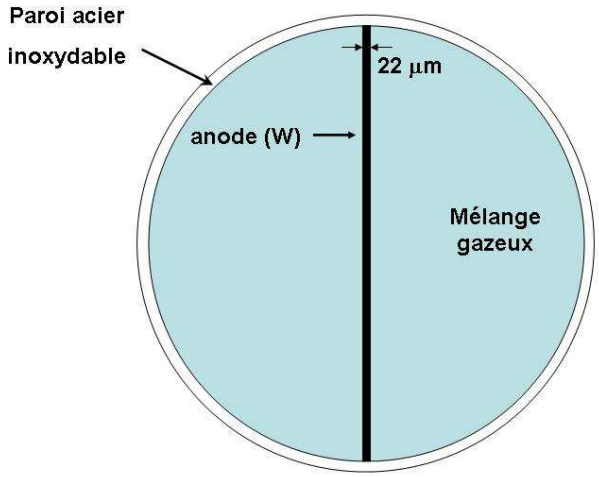


Fig. 2.10 – Modèle géométrique du compteur proportionnel sphérique pour les simulations MCNP

Le flux de neutrons $\dot{N}$, est le quotient de dN par dt où dN est la variation du nombre de neutrons pendant l'intervalle de temps dt :

$$\dot{N} = \frac{dN}{dt} \tag{2.4}$$

L'unité du flux est la s^{-1}.

La fluence de neutrons φ est définie comme étant le quotient de dN par da, où dN est le nombre de neutrons incidents sur une sphère d'aire da :

$$\varphi = \frac{dN}{da} \tag{2.5}$$

L'unité de la fluence est le m^{-2} mais l'unité la plus usitée est le cm^{-2}.

Le débit de fluence des neutrons Φ est le quotient de $d\varphi$ par dt, où $d\varphi$ est la variation de la fluence de neutrons pendant l'intervalle de temps dt :

$$\Phi = \frac{d\varphi}{dt} \tag{2.6}$$

Les grandeurs dosimétriques permettent d'apprécier les effets biologiques et/ou physiques d'un rayonnement.

Deux matériaux différents, s'ils sont soumis à la même exposition, vont absorber des quantités d'énergie différentes. Plusieurs phénomènes importants, parmi lesquels des changements dans les propriétés physiques et des réactions chimiques induites, sont en général reliés à la quantité d'énergie absorbée par unité de masse du matériau ; cette grandeur est définie comme étant la *dose absorbée* et est notée D. L'unité internationale correspondante est le *gray* (Gy) définie comme 1 joule par kilogramme.

En radioprotection, pour tenir compte de la nocivité propre aux différents rayonnements, la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) a recommandé d'appliquer à la dose absorbée un facteur de pondération, W_R, qui tient compte de "l'efficacité biologique" de la particule incidente. La dose absorbée ainsi pondérée est appelée dose équivalente :

$$H_T = W_R \cdot D_{T,R} \tag{2.7}$$

L'unité de la dose équivalente est le *sievert* (Sv), égal à un joule par kilogramme.

Pour la dosimétrie neutronique, le facteur de pondération W_R appelé également facteur de conversion dose/équivalent de dose varie en fonction de l'énergie des neutrons incidents et est représenté dans le graphe 1 de l'annexe A.

Les grandeurs déterminées en sortie de l'instrument ROSPEC sont le débit de fluence neutronique Φ et l'équivalent de dose ambiant noté $H^*(10)$.

2.2.3 Protocole de mesure et protocole de modélisation adoptés

Comme précisé auparavant, la modélisation du comportement du ROSPEC se fait conjointement avec une campagne d'inter-comparaison impliquant trois appareils. À l'occasion de cette inter-comparaison, un protocole de mesures a été défini et a été suivi pour chaque instrument testé [74]. Les procédures suivies font appel à un certain nombre de références normatives [67] [75] [76].

2.2.3.1 Définition du point de référence

La détermination du centre effectif du spectromètre (meilleure estimation du point de référence de l'appareil) est l'un des objectifs du présent travail.

Le centre du cercle passant par chacun des centres géométriques des compteurs SP2-1,

SP2-4, SP2-10 et SP6 est considéré *a priori* comme le point de référence de l'instrument, afin d'initier la campagne d'inter-comparaison.

2.2.3.2 Mode de fonctionnement du ROSPEC

Pour réaliser l'inter-comparaison, le mode de fonctionnement par défaut est le mode rotatif pendant toute la durée de l'exposition. Il est à noter que le ROSPEC est protégé par son couvercle cylindrique lors des expériences.

2.2.3.3 Description de l'installation

L'installation choisie pour l'inter-comparaison est celle du Laboratoire Associé au Bureau National de Métrologie (LMDN [3], IRSN [4] Cadarache). Ce laboratoire est doté notamment de deux sources de type radionucléide recommandées par l'ISO (^{241}Am-Be et ^{252}Cf) pouvant délivrer quatre types de champs de rayonnement neutronique, à savoir :

- ^{241}Am-Be + blindage de plomb d'un millimètre d'épaisseur ;
- ^{252}Cf *nue* ;
- ^{252}Cf modérée avec une sphère de D_2O et à laquelle est ajouté un écran de cadmium ;
- ^{252}Cf modérée avec une sphère de D_2O ;

Le débit d'émission neutronique de chaque source est relié et traçable à un étalon primaire [74]. Les caractéristiques des sources utilisées sont données dans le tableau 2.5

2.2.3.4 Définition du point test

Le point de test, tel qu'il est défini par l'ISO [75], se situe à une distance de 75 cm du centre géométrique de chaque source étudiée, dans un axe perpendiculaire à l'axe de la source originelle de neutrons.

[3] Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons
[4] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

Source	^{241}Am-Be/Pb 1 mm	^{252}Cf	(^{252}Cf + D_2O)$_{/Cd}$	^{252}Cf + D_2O
Débit d'émission B, s^{-1}	(3,67 ± 0,04) × 10^7 (1/10/87)	(4,55 ± 0,07) × 10^8 (1/6/90)	(4,05 ± 0,06) × 10^8 (1/6/90)	(4,25 ± 0,06) × 10^8 (1/6/90)
Demi-vie, *anne*	432,2 ± 0,6	2,645 ± 0,008	2,645 ± 0,008	2,645 ± 0,008
Dimensions source diamètre + hauteur (mm)	30 + 30	5 + 31,5	300 ($e_{/Cd}$=1 mm)	300
Facteur de correction d'anisotropie $F_I(\theta)$	1 ± 0,01	1,025 ± 0,01	1 ± 0,01	1 ± 0,01
Coefficient d'atténuation dans l'air, cm^{-1}	0,89 × 10^{-4}	1,055 × 10^{-4}	2,964 × 10^{-4}	2,964 × 10^{-4}

TAB. 2.5 – Caractéristiques des sources utilisées lors de l'inter-comparaison [74]

2.2.4 Modélisation de la rotation du ROSPEC

2.2.4.1 Définition du mode stationnaire

Le protocole de mesures adopté lors de l'intercomparaison impose 75 cm comme distance de référence entre le centre géométrique de la source et le centre géométrique du détecteur. La modélisation des compteurs proportionnels consiste dans un premier temps à étudier le spectre de fluence neutronique détecté à 75 cm. Cette étude est réalisée dans un régime stationnaire : le détecteur considéré est virtuellement placé à 75 cm et reste immobile. Ce type de configuration sera appelé "mode fixe" dans la suite de l'exposé. La quantité calculée ainsi est le débit de fluence en mode déporté à une énergie de neutrons donnée et sera notée $\Phi_{fixe}(E_n)$. En calculant $\Phi_{fixe}(E_n)$ pour chaque détecteur sur son domaine de sensibilité, nous pouvons obtenir le spectre de débit de fluence pour un détecteur donné.

Le découpage énergétique des canaux neutrons utilisé pour la détermination des spectres de débit de fluence correspond au découpage énergétique des spectres de neutrons mesurés obtenus en sortie du ROSPEC. Ce découpage est le résultat de la déconvolution spectrométrique employée par le ROSPEC. Nous aurons l'occasion d'y revenir au chapitre 4. Le

tableau 2.6 donne le découpage énergétique des canaux neutrons pour chaque détecteur du ROSPEC.

Détecteur	Découpage énergétique correspondant (E_n en keV)
compteur 0 (SP2-1)	47,2 ; 53,9 ; 61,8 ; 69,8 ; 79,1 ; 89,8 ; 101,8 ; 116,4 ; 132,3 ; 146,9 ; 170,9 ; 193,5 ; 220,5 ; 249,5.
compteur 1 (SP2-4)	144,2 ; 161,2 ; 178,2 ; 198,6 ; 219,0 ; 242,8 ; 270,0 ; 300,6 ; 334,6 ; 372,0 ; 412,8 ; 460,4 ; 511,4 ; 565,8 ; 630,6 ; 698,4.
compteur 2 (SP2-10)	383,1 ; 422,7 ; 472,2 ; 521,7 ; 581,1 ; 650,4 ; 719,7 ; 800,0 ; 888,0 ; 987,0 ; 1095,9 ; 1214,7 ; 1353,3 ; 1501,8.
compteur 3 (SP6)	1078 ; 1218 ; 1386 ; 1582 ; 1806 ; 2030 ; 2310 ; 2646 ; 3010 ; 3402 ; 3878 ; 4410 ; 4998.
compteur 4 (^{3}He nu)	$< 10^{-3}$.
compteur 5 (^{3}He + ^{10}B)	entre 10^{-3} et 10.

Tab. 2.6 – Découpage énergétique des canaux neutrons des détecteurs du ROSPEC

2.2.4.2 Description de l'environnement modélisé

Un jeu de quatre fichiers décrivant la géométrie de l'installation de mesure a été fourni par le Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons de l'IRSN. Ils décrivent en particulier la géométrie exacte des sources, notamment avec des précisions sur les dimensions de la source, des blindages et la composition des différents matériaux composant l'ensemble. En outre, les sources et l'instrument sont placés dans l'atmosphère ambiante. Les calculs devront tenir compte des perturbations induites par l'air, les murs, la toiture et les structures.

2.2.4.3 Définition des sources

Pour 3 champs neutroniques étudiés, une seule source de type radionucléide, à savoir la source de californium 252, est utilisée. Afin d'entreprendre les calculs, il est important de choisir la distribution énergétique des neutrons partant de la source. C'est la distribution énergétique ISO qui est choisie et sera entrée dans la carte SOURCE du fichier d'entrée de MCNP [77] [78].

En ce qui concerne la production du champ neutronique (^{252}Cf + D_2O), une sphère remplie d'eau lourde de 15 cm de rayon est ajoutée à la source originelle de californium

252.

Le champ neutronique $(^{252}\mathrm{Cf} + \mathrm{D_2O})_{/Cd}$ est produit en ajoutant à la source précédente une sphère supplémentaire de Cadmium d'épaisseur 1 mm.

Pour le champ neutronique produit par une source ^{241}AmBe, c'est la distribution ISO qui est également utilisée dans la carte source du code de calcul [77] [78].

2.2.4.4 Simulation de la rotation dans MCNP

Le spectromètre ROSPEC tourne à une vitesse régulière de 4 tours par minute en mode de fonctionnement normal. Étant donné qu'il n'est pas possible de tenir compte du paramètre temporel dans le code MCNP, il est nécessaire de mettre en place une méthode qui permette de simuler la rotation du système spectroscopique modélisé. Dans un premier temps, il s'agit de faire "tourner" un seul compteur à la fois. Il est à noter que chaque détecteur du ROSPEC tourne autour de l'axe central du plateau sur un rayon de giration qui lui est propre. Ces rayons sont indiqués sur la figure 2.2.

Il faut discrétiser le problème posé par la rotation : cela consiste ainsi à décomposer le mouvement de rotation en plusieurs étapes. Nous avons choisi de le faire selon 8 positions successives instantanées : il s'agit en quelque sorte de prendre un cliché du compteur tous les 45 degrés (figure 2.11). Nous supposons que la réponse globale du détecteur i après une rotation entière peut être obtenue en calculant la moyenne arithmétique des 8 réponses "instantanées" obtenues pour les positions successives simulées :

$$(\Phi_{rot}(E_n))_i = \frac{1}{8}\sum_{\theta=0}^{\frac{7\pi}{4}} (\Phi_\theta(E_n))_i \tag{2.8}$$

où θ est l'angle qui repère la position du compteur par rapport à sa position de départ à $t = 0$ ($\theta_{t=0} = 0$), $(\Phi(E_n))_i$ est le débit de fluence de neutrons à l'énergie E_n et $(\Phi_\theta(E_n))_i$ est le débit de fluence pour la position θ.

La quantité $\Phi_{rot}(E_n)$ est calculée pour chaque détecteur du ROSPEC sur le domaine des énergies de neutrons E_n qu'il couvre et selon le découpage énergétique présenté dans le tableau 2.6.

Les calculs sont réalisés pour les 6 détecteurs du ROSPEC et pour les quatre champ neutroniques étudiés.

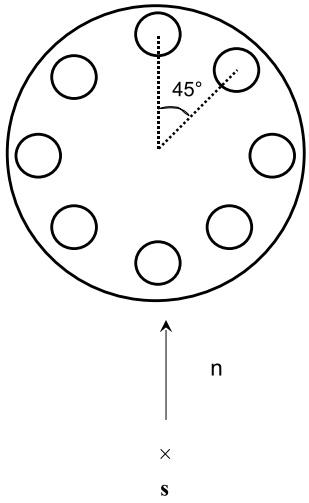


Fig. 2.11 – Méthode utilisée pour modéliser la rotation d'un compteur sphérique

2.2.4.5 Étude de l'influence de la rotation

Pour quantifier l'effet de la rotation sur les détecteurs, nous allons faire la comparaison entre leurs réponses modélisées en "mode fixe" et en "mode rotation". Pour ce faire, un rapport r caractéristique de l'influence de la rotation à une énergie donnée E_n et pour un compteur i est défini comme suit :

$$r_i(E_n) = \frac{(\Phi_{rot}(E_n))_i}{(\Phi_{fixe}(E_n))_i} \tag{2.9}$$

où $\Phi_{rot}(E_n)$ est le débit de fluence neutronique en "mode rotation" à l'énergie E_n et $\Phi_{fixe}(E_n)$ est le débit de fluence neutronique en "mode fixe". L'incertitude attachée à ce rapport, notée $\Delta(r(E_n))$ est donnée par :

$$\Delta(r(E_n)) = r(E_n) \times \left\{ \frac{\Delta(\Phi_{rot}(E_n))}{\Phi_{rot}(E_n)} + \frac{\Delta(\Phi_{fixe}(E_n))}{\Phi_{fixe}(E_n)} \right\} \tag{2.10}$$

où $\Delta(\Phi_{rot}(E_n))$ est l'incertitude relative à $\Phi_{rot}(E_n)$ et $\Delta(\Phi_{fixe}(E_n))$ est l'incertitude relative à $\Phi_{fixe}(E_n)$.

2.2.5 Détermination des perturbations mutuelles entre les détecteurs du ROSPEC

Il s'agit maintenant de modéliser l'ensemble spectrométrique dans son entier. Pour un détecteur donné, quantifier les pertubations engendrées par les détecteurs voisins est quasiment impossible à faire expérimentalement. Cela nécessiterait en effet de pouvoir mesurer, pour ce compteur, les spectres de débit de fluence des neutrons diffusés par les 5 autres compteurs avoisinants. Pour accéder à cette information, nous mettons en place une méthode de simulation qui nécessitera deux types de calculs. Cette méthode tient compte de la rotation du ROSPEC. Prenons l'exemple du compteur 0 pour illustrer la démarche suivie. En utilisant le comptage adéquat dans MCNP, il est possible de déterminer, dans une première série de calculs, le débit de fluence des neutrons diffusés par une ou plusieurs cellule(s) diffusante(s) ; ces neutrons étant comptabilisés au final dans la cellule étudiée (ici la cellule représentant le compteur SP2-1). Nous pouvons alors calculer la somme des contributions (notée C) des 5 autres compteurs dans le compteur SP2-1 :

$$C_{SP2-1} = \frac{\sum\limits_{compteur(i\neq 0)} \Phi^{i}_{diffusé}}{\Phi_{SP2-1}} \tag{2.11}$$

Les calculs sont réalisés pour les 6 compteurs proportionnels du ROSPEC dans les 4 champs neutroniques étudiés.

La deuxième série de calculs a pour but de quantifier les perturbations mutuelles entre les détecteurs. Dans cette situation, nous calculons le spectre de débit de fluence Φ_{seul} des neutrons pénétrant dans l'enceinte du compteur SP2.

La seconde étape des calculs consiste cette fois-ci à placer le détecteur SP2-1 avec les 5 autres détecteurs tels quels. Nous calculons alors le débit de fluence des neutrons noté Φ_{rospec} pénétrant dans le compteur SP2-1 en tenant compte de la présence des autres détecteurs. L'étude quantitative de l'influence des perturbations mutuelles entre détecteurs va finalement se résumer à calculer le rapport $I = \frac{\Phi_{rospec}}{\Phi_{seul}}$ pour chaque détecteur (figure 2.12) et dans les champs neutroniques étudiés.

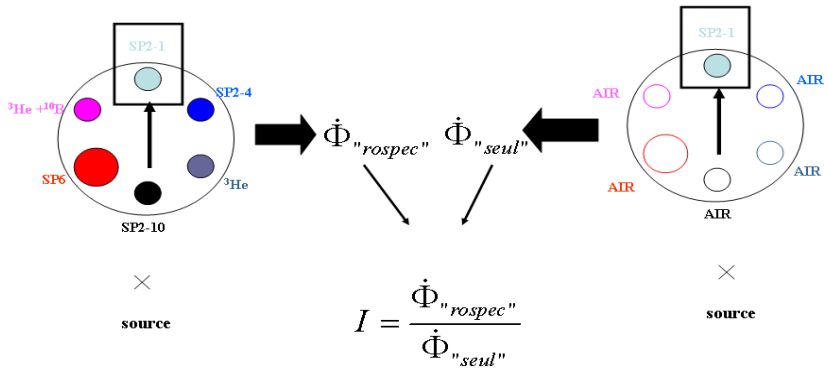


Fig. 2.12 – Schéma illustrant la méthode utilisée pour quantifier les perturbations mutuelles entre détecteurs

2.3 Résultats

2.3.1 Influence de la rotation

Pour cette partie de l'étude, nous avons choisi de fixer le nombre d'histoires pour la simulation à 10^8, ce qui permet d'obtenir une statistique satisfaisante.

Les résultats pour les rapports r (qui permettent de comparer le mode "fixe" et le mode "rotation") sont résumés dans les tableaux 2.7 et 2.8 :

Rapport r_i	^{3}He (no. 4)	^{3}He + ^{10}B (no. 5)	SP2-1
Domaine d'énergie	0,01 eV - 1 eV	1 - 57 keV	57 - 250 keV
^{252}Cf	-	-	0,97 ± 0,05
^{252}Cf + D_2O	1,03 ± 0,03	1,03 ± 0,08	0,96 ± 0,06
(^{252}Cf + D_2O)$_{/Cd}$	0,74 ± 0,33	1,04 ± 0,09	0,93 ± 0,09
^{241}AmBe + Pb	-	-	0,95 ± 0,08

Tab. 2.7 – Rapport r_i exprimant l'influence de la rotation

Pour chaque compteur, il est possible de déterminer les rapports en fonction de l'énergie. La figure 2.13 montre l'évolution de r_i pour les détecteurs couvrant le domaine d'éner-

Rapport r_i	SP2-4	SP2-10	SP6
Domaine d'énergie	150 - 700 keV	400 keV - 1,5 MeV	1 - 4,5 MeV
^{252}Cf	1,03 ± 0,04	1,03 ± 0,04	1,00 ± 0,01
^{252}Cf + D_2O	1,02 ± 0,08	1,05 ± 0,08	1,00 ± 0,01
$(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$	1,02 ± 0,08	1,04 ± 0,08	1,02 ± 0,02
^{241}AmBe + Pb	1,03 ± 0,05	1,03 ± 0,03	1,00 ± 0,02

TAB. 2.8 – Rapport r_i exprimant l'influence de la rotation

gie des neutrons rapides (50 keV à 4,5 MeV) dans un champ neutronique généré par une source de ^{252}Cf nue.

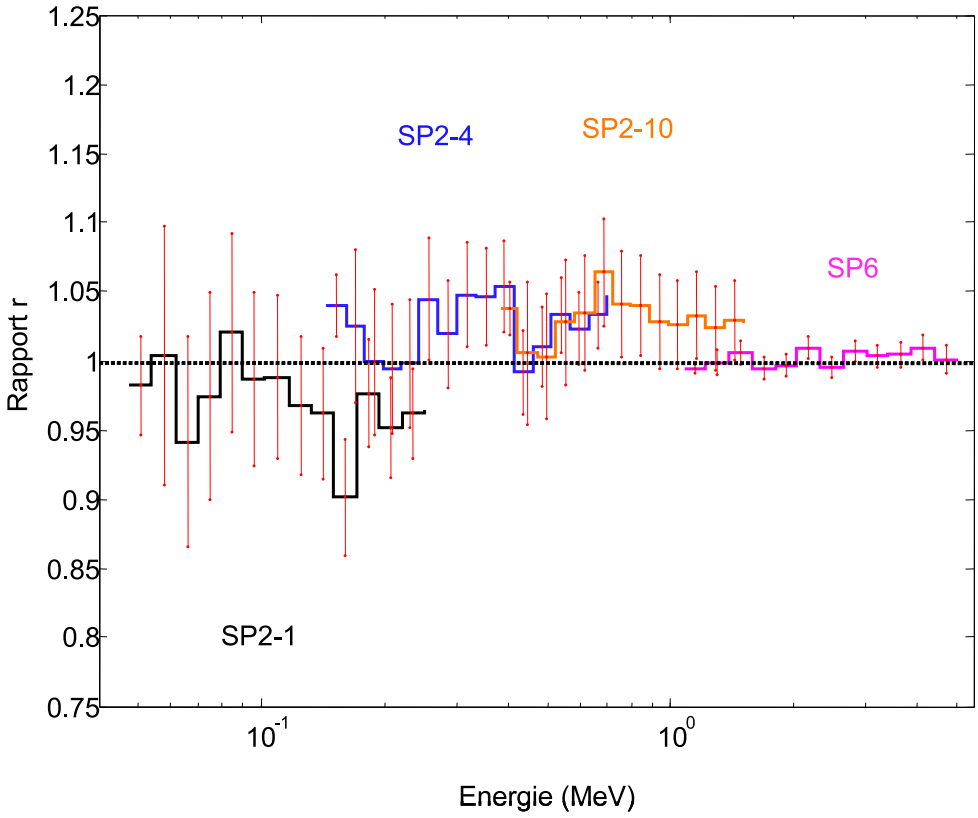


FIG. 2.13 – Rapport r_i calculé pour les détecteurs couvrant le domaine des neutrons rapides pour une source de Cf nue

La figure 2.14 montre l'évolution de r_i dans le même domaine pour un champ neutronique généré par une source de californium modérée avec D_2O.

La figure 2.15 montre l'évolution de r_i dans le même domaine pour un champ neutronique généré par une source de AmBe.

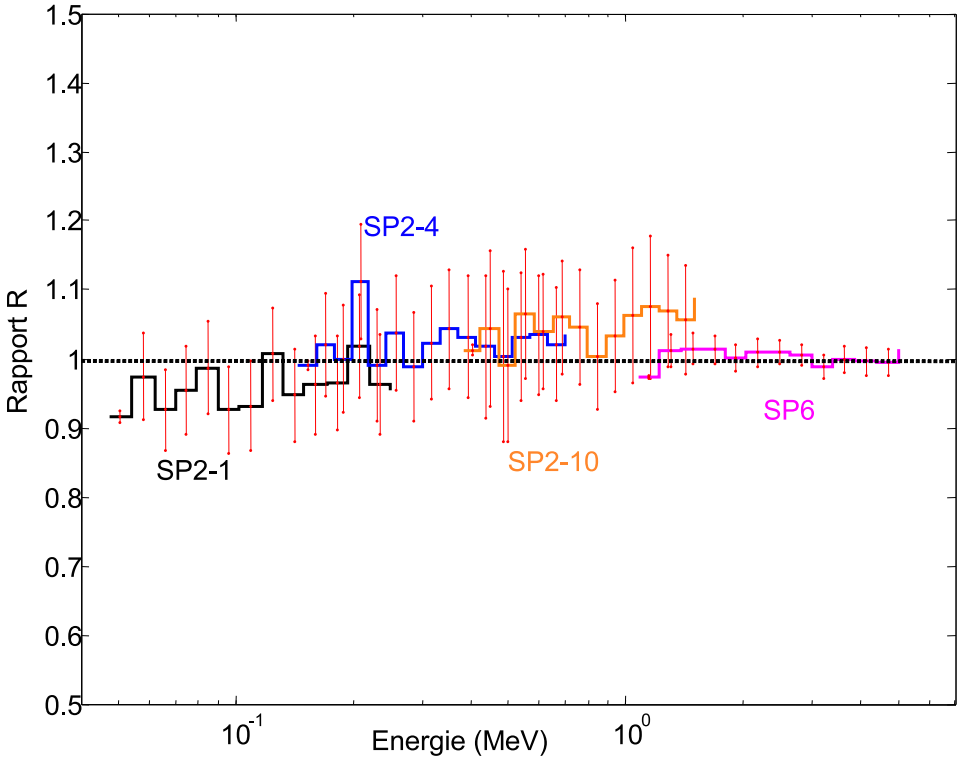


Fig. 2.14 – Rapport r_i calculé pour les détecteurs couvrant le domaine des neutrons rapides pour une source de Cf modérée avec D_2O

Globalement, nous constatons que le rapport r_i est très proche de 1 (aux incertitudes statistiques près) pour les détecteurs sensibles aux neutrons d'énergie entre 1 keV et 4,5 MeV. Cette remarque est valable pour les quatre champs neutroniques étudiés. Les fluences spectrales des neutrons dans les compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et surtout celle du compteur SP6 (rapport quasiment égal à 1) en mode "rotation" et en mode "fixe" sont donc très proches, ce qui nous amène à conclure, au vu de ces calculs que ces compteurs sont peu affectés par la rotation de l'appareil.

Par contre, le rapport r_i pour le compteur 4 vaut approximativement 1 pour le californium modéré par D_2O. Cela signifie que son efficacité de détection n'est pas modifiée qu'il soit en rotation ou immobile au point test. Le rapport r_i pour ce détecteur dans le cas de $(Cf + D_20)_{/Cd}$ vaut 0,74, seulement cette valeur est entachée d'une incertitude très importante. Ceci peut être expliqué par une faible statistique de comptage dans cette région d'énergie. En effet, le cadmium réduit fortement la proportion de neutrons thermiques. En conclusion, cette valeur est à considérer avec précaution.

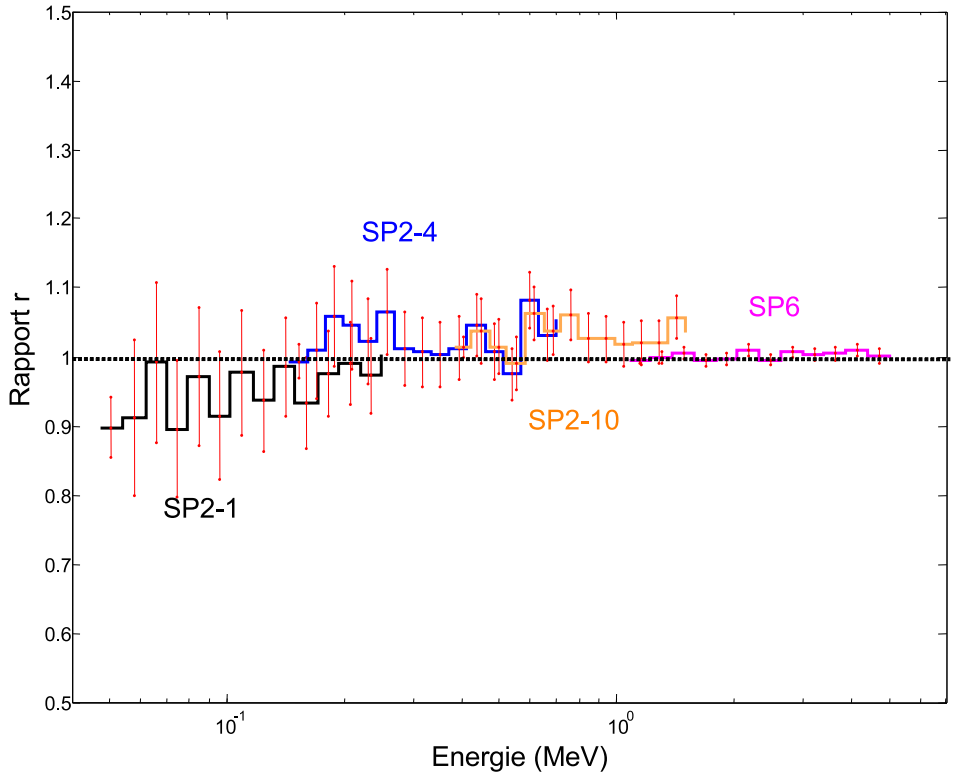


FIG. 2.15 – Rapport r_i calculé pour les détecteurs couvrant le domaine des neutrons rapides pour une source d'AmBe

2.3.2 Influences mutuelles entre les détecteurs

Dans un premier temps, les résultats obtenus concernent la quantification, pour un détecteur donné, du pourcentage C du débit de fluence diffusé par les autres détecteurs par rapport au débit de fluence total des neutrons détectés. Ces résultats sont présentés dans les tableaux 2.9 et 2.10.

	^{3}He (4)	^{3}He + ^{10}B (5)	SP2-1
Domaine d'énergie	0,01 eV - 1 eV	1 - 57 keV	57 - 250 keV
^{252}Cf	9 ± 1%	< 1%	39 ± 1%
^{252}Cf + D_2O	22 ± 1%	33 ± 1%	26 ± 1%
$(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$	22 ± 1%	33 ± 1%	27 ± 1%
^{241}AmBe + Pb	13 ± 1%	< 1%	40 ± 1%

TAB. 2.9 – Valeurs de C quantifiant les perturbations mutuelles entre les compteurs

	SP2-4	SP2-10	SP6
Domaine d'énergie	150 - 700 keV	400 keV - 1,5 MeV	1 - 4,5 MeV
^{252}Cf	29 ± 1%	10 ± 1%	10 ± 1%
^{252}Cf + D_2O	25 ± 1%	25 ± 1%	7 ± 1%
$(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$	26 ± 1%	25 ± 1%	7 ± 1%
^{241}AmBe + Pb	28 ± 1%	36 ± 1%	14 ± 1%

Tab. 2.10 – Valeurs de C quantifiant les perturbations mutuelles entre les compteurs

L'incertitude statistique, fixée par le nombre d'histoires dans la simulation, est de 1% sur l'ensemble des calculs. La valeur de C varie selon le détecteur et le champ neutronique étudiés. Il atteint 40% pour le compteur SP2-1 lorsqu'il est placé dans un champ neutronique rayonné par une source de ^{241}AmBe. Analysons compteur par compteur les résultats obtenus :

- Compteur 4 (sensible aux neutrons thermiques) : la valeur de C est plus importante dans le cas des sources de ^{252}Cf modérées car la proportion des neutrons thermiques et épithermiques est plus élevée pour ces sources. Ce compteur est moins perturbé par son voisinage pour ^{252}Cf nue et ^{241}AmBe ;
- Compteur 5 : il ne semble perturbé, à hauteur de 33%, que lorsqu'il est placé en champs neutroniques $^{252}Cf + D_2O$ et $(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$.
- Compteur SP2-1 : c'est le compteur qui semble le plus perturbé par ses voisins. Cette perturbation est plus importante pour ^{252}Cf nue et ^{241}AmBe. Cela s'explique par le fait que ces sources émettent principalement des neutrons rapides auxquels est sensible ce compteur. Il faut également tenir compte des neutrons dont l'énergie se situe au-delà de E_{max} (borne supérieure du domaine d'énergie auquel est sensible le détecteur). En effet, les neutrons de plus haute énergie sont diffusés par les autres compteurs et vont perdre suffisamment d'énergie pour être détectés par le compteur d'énergie inférieure, ici le SP2-1. C'est le phénomène de perte d'énergie des neutrons par diffusions successives.
- Compteur SP2-4 : la valeur de C atteint 29% pour la source de ^{252}Cf nue. Ce compteur détecte les neutrons ayant subi le phénomène de perte d'énergie par diffusions successives mais dans une moindre mesure par rapport au compteur SP2-1 car il ne détecte pas les neutrons dont l'énergie est inférieure à 150 keV.
- Compteur SP2-10 : ce compteur est relativement moins perturbé que le SP2-4 sauf pour la source ^{241}AmBe. En effet, cette source émet beaucoup de neutrons dans le domaine auquel est sensible SP2-10 (de 400 keV à 1,5 MeV).
- Compteur SP6 : c'est le détecteur le moins perturbé par ses voisins. Ce résultat

s'explique par sa taille mais également par le fait qu'étant sensible qu'aux neutrons rapides, il subit très peu l'influence des neutrons ayant perdu de l'énergie cinétique par diffusions successives.

Les tableaux 2.11 et 2.12 présentent les résultats des calculs pour le ratio I.

	^{3}He (no. 4)	^{3}He + ^{10}B (no. 5)	SP2-1
Domaine d'énergie	0,01 eV - 1 eV	1 - 57 keV	57 - 250 keV
^{252}Cf	-	-	0,97 ± 0,02
^{252}Cf + D_2O	0,58 ± 0,01	0,93 ± 0,03	0,94 ± 0,05
$(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$	0,57 ± 0,02	0,93 ± 0,04	0,94 ± 0,05
^{241}AmBe + Pb	-	-	0,95 ± 0,08

TAB. 2.11 – Valeurs des rapports I

	SP2-4	SP2-10	SP6
Domaine d'énergie	150 - 700 keV	400 keV - 1,5 MeV	1 - 4,5 MeV
^{252}Cf	0,98 ± 0,01	0,93 ± 0,03	0,99 ± 0,01
^{252}Cf + D_2O	0,97 ± 0,07	0,98 ± 0,07	0,99 ± 0,02
$(^{252}Cf + D_2O)_{/Cd}$	0,94 ± 0,08	0,99 ± 0,05	0,99 ± 0,01
^{241}AmBe + Pb	1,03 ± 0,05	1,03 ± 0,03	0,99 ± 0,01

TAB. 2.12 – Valeurs des rapports I

Il apparaît que tous les rapports calculés sont proches de 1, aux incertitudes statistiques près sauf pour le compteur 4.

Pour approfondir l'étude des compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6, les calculs ont été réalisés dans des configurations où deux de ces compteurs sont alignés le long de l'axe de la source. En effet, dans sa position particulière, un détecteur en éclipse un autre.

Nous avons pris un premier exemple avec la source de ^{252}Cf nue où dans la phase instantanée de la rotation, le compteur 1 éclipse le compteur 0 (figure 2.16). Le pourcentage de neutrons diffusés par le compteur SP2-4 sur le compteur SP2-1 est de 32%. Nous avons calculé le spectre de fluence de ces neutrons qui est représenté en bleu. L'objectif est de déterminer si l'allure du spectre détecté par le compteur SP2-1 subit des modifications du fait de la contribution importante des neutrons diffusés. Nous avons comparé le spectre de neutrons détectés par le SP2-1 seul avec celui détecté lorsqu'il est placé avec les autres compteurs. Ces deux spectres sont quasiment confondus. Nous remarquons que l'allure générale du spectre des neutrons diffusés est similaire à celle des spectres précédents, à ceci près qu'il est multiplié par un facteur 0,32.

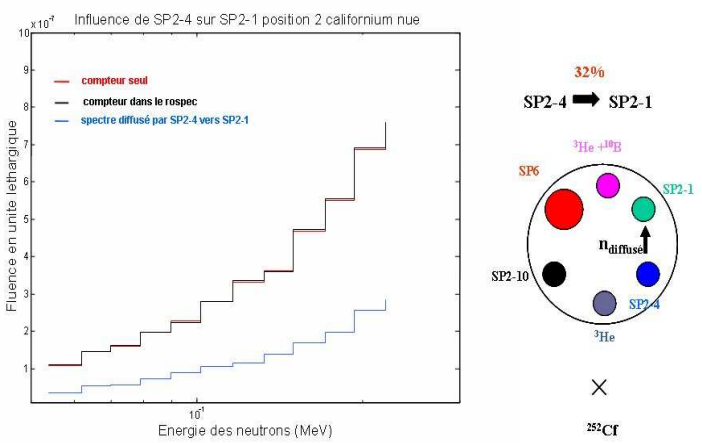


Fig. 2.16 – Influence du compteur SP2-4 sur le compteur SP2-1 dans une position où ces compteurs sont alignés avec la source

Prenons un second exemple avec la même source, mais où le compteur SP2-10 éclipse le compteur SP2-1 (figure 2.17). Le pourcentage de neutrons diffusés par le compteur SP2-10 et détectés par le compteur SP2-1 est de 85%. Le spectre de ces neutrons est représenté en bleu. Nous avons comparé le spectre de neutrons détectés par le SP2-1 seul avec celui détecté lorsqu'il est placé avec les autres compteurs. Ces deux spectres sont quasiment confondus. Nous remarquons que l'allure générale du spectre des neutrons diffusés est similaire à celle des spectres précédents, à ceci près qu'il est multiplié par un facteur 0,85.

Ce type de calculs a été réalisé dans toutes les situations où deux compteurs sont alignés avec la source et les conclusions sont similaires. Cela signifie que malgré un phénomène important de diffusion de neutrons entre compteurs voisins et alignés avec la source, le spectre de fluence de neutrons détecté au final n'est pas dénaturé et ne subit de modifications au niveau de sa distribution énergétique.

La réponse du compteur 4 est inférieure de 42% lorsqu'il est placé avec les 5 autres détecteurs que lorsqu'il placé seul. La perturbation qu'il subit est donc très importante.

Nous notons donc que malgré de fortes contributions en terme de diffusion neutronique entre les détecteurs, les fluences spectrales des 5 compteurs couvrant le domaine d'énergie 1 keV à 4,5 MeV sont peu modifiées au vu des résultats obtenus pour les rapports. Seul le compteur 4, sensible au domaine des neutrons thermiques, pose un problème puisque sa réponse est modifiée de façon très importante en passant de la configuration "un compteur" à la configuration "6 compteurs".

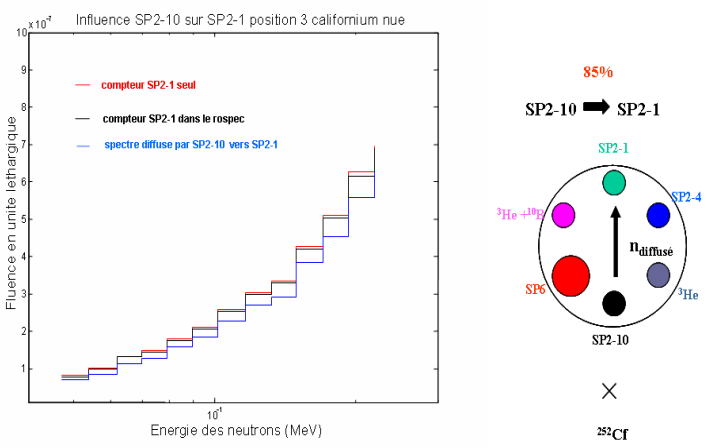


Fig. 2.17 – Influence du compteur SP2-10 sur le compteur SP2-1 dans une position où ces compteurs sont alignés avec la source

2.4 Bilan de la modélisation

L'objectif de la modélisation était double. La première partie de l'étude a révélé que l'effet de la rotation sur les compteurs proportionnels du ROSPEC dépendait de la nature du champ neutronique. Globalement, les compteurs numéro 5, SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6 semblent peu affectés par la rotation de l'ensemble. Le compteur 4 est peu affecté avec la source de californium modérée par D_2O. La modélisation a permis de montrer que la rotation de l'instrument ne perturbe aucunement le fonctionnement des détecteurs.

La deuxième partie a consisté à quantifier les perturbations entre les détecteurs. Les influences en terme de diffusion des neutrons entre compteurs ont été évaluées et se révèlent non négligeables. Toutefois, en procédant au calcul des rapports comparatifs entre la configuration "1 compteur" et "6 compteurs", nous nous rendons que seul le compteur sensible aux neutrons thermiques est affecté par son voisinage immédiat. Son rapport I est en effet proche de 0,6. Cela signifie que sa réponse est diminuée du fait de la proximité des autres détecteurs mais pas seulement. Il est important de noter que la présence du compteur SP6 - dont le diamètre est 3 fois plus grand que celui des autres compteurs - influe fortement sur les autres compteurs puisqu'il diffuse beaucoup plus de neutrons. En conclusion, plusieurs paramètres importants entrent en jeu dans le fonctionnement de l'ensemble spectrométrique :

1. les positions relatives des détecteurs qui varient avec le temps avec la possibilité qu'un détecteur "cache" temporairement un autre ;
2. l'angle solide de détection qui varie selon le déplacement des détecteurs par rapport

à la source, la distance de détection variant selon la rotation de l'appareil ;

3. la section efficace de diffusion élastique qui varie selon le domaine d'énergie des neutrons considérés.

Nous notons que la disposition des détecteurs a été choisie afin de minimiser les perturbations entre compteurs voisins. Par exemple, les détecteurs placés en vis-à-vis couvrent des domaines d'énergie non contigus comme nous pouvons le voir dans la figure 2.17. C'est le cas des détecteurs SP2-10 (400 keV $\leq E_n \leq$ 1,5 MeV) et SP2-1 (50 keV $\leq E_n \leq$ 250 keV), et des détecteurs SP2-4 (150 keV $\leq E_n \leq$ 700 keV) et SP6 (1 MeV $\leq E_n \leq$ 4,5 MeV) respectivement. Les calculs ont montré que les perturbations entre les détecteurs cités sont effectivement minimes.

Chapitre 3

Fonctions de réponse des compteurs proportionnels du ROSPEC

À ce stade de l'étude nous allons nous intéresser au fonctionnement interne des compteurs proportionnels sphériques que sont les détecteurs composant le ROSPEC. Nous allons nous attacher dans le présent chapitre à caractériser de la façon la plus complète possible les compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6.

3.1 Principe de détection mis en jeu dans les compteurs proportionnels à protons de recul

Les compteurs proportionnels SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6 détectent les neutrons *via* la diffusion élastique de ces derniers avec des noyaux du gaz de remplissage, c'est-à-dire grâce à la production de protons de recul dans l'hydrogène (ou le gaz hydrogéné comme CH_4).

3.1.1 Particularités des compteurs proportionnels à protons de recul

Les compteurs proportionnels utilisant la diffusion élastique (n,p) doivent être remplis avec de l'hydrogène ou tout autre gaz hydrogéné [79]. En effet, l'avantage de ce type de

compteurs réside dans le fait que la section efficace de diffusion (n,p) :

- est très bien connue et évolue de façon monotone avec l'énergie ;
- est isotropique dans le système de centre de masse pour les neutrons d'énergie inférieure à 5 MeV ;
- peut être décrite de façon simple par la théorie de la diffusion car les masses du neutron et du proton sont voisines ;
- est assez importante pour permettre la conception de compteurs proportionnels ayant une efficacité suffisamment élevée.

La diffusion élastique produit des protons de recul ayant une perte d'énergie moyenne de $W_p = 36$ eV par paire d'ions produite au-dessus de 3 keV.

Le compteur SP6, sensible aux neutrons d'énergies comprises entre 1 et 4,5 MeV, est rempli avec du méthane car ce dernier a un fort pouvoir d'arrêt pour les protons de recul. En effet, au-delà de 250 keV, les parcours des protons de recul sont environ 3,5 fois plus courts dans le méthane que dans l'hydrogène. Il convient à la détection des neutrons rapides. Il est également rempli avec de l'argon qui agit en tant que gaz de quenching.

Les autres compteurs sont du type SP2. Leurs avantages sont les suivants :

- ils ont une très bonne résolution énergétique ($\frac{\Delta E}{E}$ de l'ordre de quelques pourcents) pour la spectrométrie neutronique ;
- ils fonctionnent dans des champs neutroniques à forte compostante spectrale thermique et épithermique ;
- ils peuvent couvrir le domaine d'énergie des neutrons 50 - 1500 keV.
- Ils présentent un rapport signal sur bruit satisfaisant.

Les inconvénients de ce type de détecteur sont à prendre en compte et sont les suivants :

- comme les compteurs ont un fil anodique très fin, ils sont hautement microphoniques. Ce problème peut être résolu en les enfermant dans une boîte métallique qui doit avoir l'épaisseur optimale en terme d'atténuation acoustique. Cette boîte doit être faite en aluminium (c'est le cas du couvercle du ROSPEC) ;
- comparativement aux scintillateurs organiques liquides et solides, les compteurs proportionnels gazeux ont une plus faible efficacité de détection parce que la densité de nucléons dans le gaz est très faible.

3.1.2 Mécanismes de fonctionnement des compteurs proportionnels sphériques gazeux

La détection dans les compteurs proportionnels est réalisée via la transmission d'une partie de l'énergie cinétique du neutron incident aux particules chargées du gaz. Dans les 4 détecteurs du ROSPEC étudiés, les particules chargées sont les protons.

Quand un neutron incident entre en collision avec un noyau du gaz, plusieurs processus se produisent comme suit (figure 3.1) :

- Le neutron incident, s'il est diffusé élastiquement par un noyau d'hydrogène, produit un proton de recul.
- Le proton de recul ionise le gaz le long de son parcours et produit des électrons qui dérivent vers le fil anodique le long des lignes du champ électrique interne.
- Près du fil anodique, les électrons gagnent suffisamment d'énergie pour ioniser les atomes du gaz.
- Les électrons produits par l'ionisation peuvent donner naissance à leur tour à des électrons secondaires. Ainsi, il y a formation d'une avalanche électronique (amplification gazeuse).
- Les charges sont collectées par l'anode et un signal est produit.
- Le signal est proportionnel à l'ionisation et l'est également à l'énergie du proton de recul (et non du neutron incident).
- Pour chaque énergie de neutron E_n, les énergies de protons E_p dans le domaine $0 \leq E_p \leq E_n$ dépendent de l'angle de diffusion entre le neutron incident et le proton.

3.1.3 Efficacité des compteurs proportionnels à protons de recul

Comparés aux scintillateurs liquides ou solides, les détecteurs gazeux à protons de recul sont moins efficaces vu leur plus faible densité en noyaux gazeux cibles. Leur efficacité, pour un seul neutron, peut être écrite comme suit [5] :

$$\varepsilon = 1 - e^{N\sigma_s d} \tag{3.1}$$

où N est la densité nucléaire du milieu diffuseur, σ_s est la section efficace de diffusion (n,p) et d est le libre parcours du neutron dans le volume effectif du détecteur.

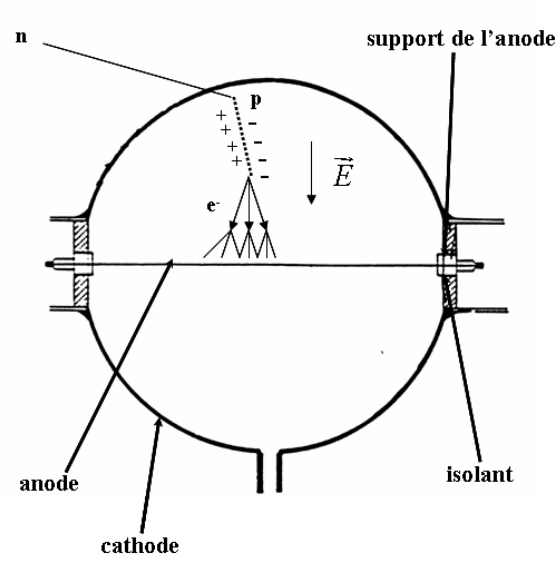


Fig. 3.1 – Principe de fonctionnement d'un compteur proportionnel à protons de recul

3.1.4 Limitations du domaine d'énergie et résolution énergétique

La limite basse du domaine d'énergie des neutrons détectables par un compteur proportionnel dépend de la perturbation des impulsions par les photons γ.

3.1.4.1 Diminution de la résolution énergétique

La résolution énergétique d'un détecteur à une énergie E_0 donnée est déterminée à partir de la largeur à mi-hauteur du pic correspondant (FWHM). Dans cette définition, il est supposé que tout bruit de fond ou continuum, sur lequel serait superposé le pic, est négligeable ou a été soustrait. La résolution énergétique du détecteur est alors conventionnellement définie comme le rapport de la largeur à mi-hauteur par l'abscisse du centroïd du pic H_0. C'est donc une quantité sans dimension exprimée habituellement en pourcentage. En supposant que le pic correspond à une distribution gaussienne :

$$G(H) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{\left(-\frac{(H-H_0)^2}{2\sigma^2}\right)} \tag{3.2}$$

où σ est l'écart-type de la distribution qui permet de déterminer la largeur à mi-hauteur : FWHM = 2,35 σ, A est l'aire du pic et H_0 est son centroïd.

L'énergie moyenne perdue $\bar{w}_p$ par un proton de recul par paire d'ions est constante et vaut 36 eV pour une énergie supérieure à 3 keV. Cela signifie qu'un neutron de 3 keV

ne peut donner naissance qu'à 100 ionisations au maximum, ce qui ne permet pas au compteur d'avoir une bonne précision statistique. De plus, $\bar{w_p}$ n'est pas constante pour les très basses énergies. Ces effets cumulés limitent la résolution énergétique.

Des considérations statistiques permettent de comprendre ce phénomène. La charge Q, qui est développée lors d'une impulsion dans un compteur proportionnel en l'absence d'effets non-linéaires, est supposée comme étant la somme des charges créées dans chaque avalanche électronique. Il y aurait n_0 de ces avalanches, chacune provoquée par un seul électron créé par n_0 paires d'ions. Ces paires d'ions étant produites par l'ionisation de la particule incidente. Soit A le facteur de multiplication électronique pour toute avalanche électronique provoquée par un électron primaire et soit M la moyenne du facteur de multiplication pour toutes les avalanches qui contribuent à la formation d'une impulsion donnée :

$$M = \frac{1}{n_0}\sum_{i=1}^{n_0} A_i \equiv \bar{A} \tag{3.3}$$

Étant donné que eA_i est la charge provoquée par la i^{ème} avalanche,

$$M = \frac{Q}{en_0} \tag{3.4}$$

ou

$$Q = n_0 eM \tag{3.5}$$

L'amplitude de l'impulsion est supposée proportionnelle à la charge Q. Cette charge est sujette à des fluctuations d'une impulsion à l'autre, même si une énergie équivalente est déposée par deux particules incidentes car n_0 et M dans les équations 3.4 et 3.5 varient de la même façon. Ces facteurs étant indépendants, il est possible d'utiliser les formules de propagation d'erreur pour prédire la variance relative de Q :

$$\left(\frac{\sigma_q}{Q}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{n_0}}{n_0}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_M}{M}\right)^2 \tag{3.6}$$

En réecrivant le second terme de la somme dans l'équation 3.6 en terme de variance du facteur de multiplication pour un seul électron, il est possible d'appliquer les formules de propagation d'énergie à l'équation 3.3 :

$$\sigma_M^2 = \left(\frac{1}{n_0}\right)^2 \sum_{i=1}^{n_0} \sigma_A^2 \;\; \sigma_M^2 = \frac{1}{n_0}\sigma_A^2 \tag{3.7}$$

En combinant les équations 3.6 et 3.7, nous obtenons :

$$\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{n_0}}{n_0}\right)^2 + \frac{1}{n_0}\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2 \tag{3.8}$$

Cette expression permet l'analyse de la variance attendue pour l'amplitude d'impulsion $\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2$ en fonction des contributions séparées des fluctuations des paires d'ions $\left(\frac{\sigma_{n_0}}{n_0}\right)^2$ et des variations de la multiplication pour un seul électron $\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2$.

Le premier terme de l'équation 3.8 représente la variance relative du nombre originel n_0 des paires d'ions. Les flucuations de n_0 peuvent être exprimées en fonction du facteur de Fano :

$$\sigma_{n_0}^2 = F n_0 \tag{3.9}$$

ou

$$\left(\frac{\sigma_{n_0}^2}{n_0}\right)^2 = \frac{F}{n_0} \tag{3.10}$$

La valeur du facteur de Fano F pour les gaz proportionnels varient entre 0,05 et 0,20. Les valeurs les plus basses de F sont généralement observées pour les mélanges gazeux binaires car l'effet Penning est important [80] [81].

Le deuxième terme de l'équation 3.8 représente la contribution des fluctuations de l'amplitude de l'avalanche mono-électron, qui a fait l'objet de plusieurs études expérimentales et théoriques [82] [83] [84] [85]. Prédire la distribution d'une avalanche provoquée par un seul électron est possible en supposant que la probabilité d'ionisation d'un électron ne dépende que de la valeur du champ électrique et non de son histoire. Il a été montré que la distribution attendue du nombre d'électrons produits pour une avalanche donnée peut être prédite par la distribution de Furry :

$$P(A) = \frac{(1 - \frac{1}{\bar{A}})}{\bar{A}} \tag{3.11}$$

où A est la multiplication de l'avalanche ou nombre des électrons dans l'avalanche et $\bar{A}$ est la valeur moyenne de A.

Si $\bar{A}$ est raisonnablement grand, la distribution de Furry se réduit à une simple forme exponentielle :

$$P(A) \cong \frac{e^{-\frac{A}{\bar{A}}}}{\bar{A}} \tag{3.12}$$

ce qui donne une variance relative $\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2 = 1$. Cela reste vrai pour les valeurs basses du champ électrique. Pour un champ électrique plus élevé, le modèle de distribution exponentielle précédente est remplacée par la distribution de Polya [83] :

$$P(A) = \left(\frac{A(1+\theta)}{\bar{A}}\right)^{\theta} e^{-\frac{A(1+\theta)}{\bar{A}}} \tag{3.13}$$

où θ est un paramètre qui dépend de la fraction d'électrons dont l'énergie excède une énergie d'ionisation seuil et est compris entre 0 et 1. La variance relative pour la distribution Polya est :

$$\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2 = \frac{1}{\bar{A}} + b \tag{3.14}$$

avec $b = \frac{1}{1+\theta}$ vaut environ 0,5. Pour les valeurs élevées $\bar{A}$

$$\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2 \cong b \tag{3.15}$$

Pour prédire la résolution énergétique, l'équation 3.8 est évaluée en remplaçant $\left(\frac{\sigma_{n_0}}{n_0}\right)^2$ selon l'équation 3.9 et $\left(\frac{\sigma_A}{\bar{A}}\right)^2$ selon l'équation 3.15, ce qui donne :

$$\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2 = \frac{F}{n_0} + \frac{b}{n_0} \tag{3.16}$$

où F est le facteur de Fano (valeurs typiquement comprises entre 0,05 et 0,20) et b est le paramètre de la distribution de Polya qui caractérise la statistique de l'avalanche (valeurs typiques comprises entre 0,4 et 0,7). Au vu de ces valeurs, nous pouvons constater que les fluctuations dans la taille de l'avalanche électronique contribuent fortement à la variance relative de la taille d'impulsion (donc de la résolution énergétique), ce qui n'est pas le cas des fluctuations du nombre initial de paires d'ions. L'écart relatif standard de la distribution de tailles d'impulsion est donné par :

$$\frac{\sigma_Q}{Q} = \left(\frac{F+b}{n_0}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{3.17}$$

Comme $n_0 = \frac{E}{W}$, où E est l'énergie déposée par la particule incidente et W est l'énergie requise pour former une paire d'ions, soit :

$$\frac{\sigma_Q}{Q} = \left(\frac{W(F+b)}{E}\right)^{\frac{1}{2}} = \left(\frac{C}{E}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{3.18}$$

où $C = W(F+b)$ qui est constant pour un gaz donné. La limite statistique de la résolution énergétique pour un compteur proportionnel va logiquement varier inversement à la racine carrée de l'énergie déposée par la particule incidente.

Les gaz utilisés dans les compteurs proportionnels ont des valeurs différentes pour W, F et b. La résolution limite atteinte est proportionnelle à $\sqrt{W(F+b)}$.

La résolution énergétique effectivement observée pour les compteurs proportionnels est très proche de la limite statistique de l'équation 3.18 [86]. Des données ont été obtenues

pour les gaz à des pressions égales ou inférieures à 1 atmosphère et confirment ce comportement, mais montrent que la résolution énergétique se détériore pour des pressions plus fortes [87].

D'autres facteurs peuvent influer sur la résolution énergétique des compteurs proportionnels parmi lesquels nous pouvons citer : le bruit électronique, les fluctuations des paramètres opératoires du compteur et la non-uniformité géométrique de la cavité du détecteur. Le plus important des paramètres géométriques est l'uniformité du fil anodique. En effet, des variations de 0,5% du diamètre de ce dernier peuvent avoir des conséquences non négligeables [88]. Des variations de la pression du gaz de quelques dixièmes de pourcent (et donc de la valeur de la multipliation gazeuse) peuvent également influer sur la résolution énergétique [88] [89].

En pratique, la largeur à mi-hauteur des compteurs proportionnels (FWHM en keV) a été donnée en fonction de l'énergie E (en keV) par la littérature en utilisant une relation plus simple :

$$FWHM = \sqrt{a + bE + cE^2} \tag{3.19}$$

où a, b et c sont des constantes qui sont obtenues en comparant les mesures avec les calculs [79]. La forme de l'équation 3.19 se base sur les hypothèses suivantes :

- Le paramètre constant a tient compte des contributions du bruit électronique.
- Le paramètre linéaire b tient compte des variations statistiques dues aux fluctuations du nombre de paires d'ions primaires et de la multiplication gazeuse.
- Le terme quadratique c prend en compte divers autres effets, comme ceux dus aux différences entre les champs électriques réel et modèle le long de l'anode. L'impureté du gaz utilisé et l'instabilité de l'instrument détecteur (amplificateurs, haute tension) sont d'autres effets intervenant dans ce paramètre c.

3.1.4.2 Perturbation des photons γ

ans les champs mixtes (n,γ), le fonctionnement du compteur proportionnel est perturbé par des signaux parasites dus aux photons γ (voir figure 3.2). En effet, ces derniers donnent naissance à des électrons Compton, lorsqu'ils interagissent avec la paroi. Ces électrons pénètrent dans le volume actif du compteur et ionisent le gaz, ce qui induit des impulsions parasites au niveau de l'anode. Par conséquent, le spectre mesuré, spécialement dans la région basse énergie en deçà de 50 keV, est une superposition d'impulsions neutrons et gammas. Nous verrons ultérieurement comment nous nous affranchissons de cet effet

pour les compteurs proportionnels du ROSPEC sans utiliser de dispositif électronique de discrimination (n,γ).

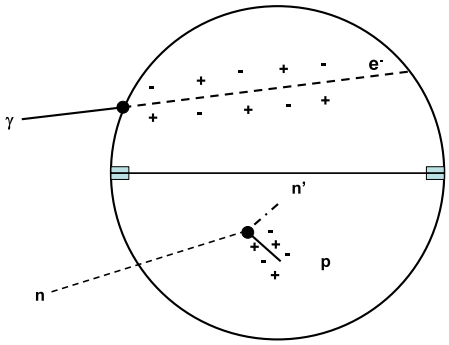


Fig. 3.2 – Perturbation par un photon gamma du fonctionnement du compteur proportionnel à protons de recul

3.1.5 Étalonnage énergétique des compteurs

L'étalonnage énergétique des compteurs proportionnels consiste à trouver la relation entre le numéro du canal et l'énergie du proton de recul correspondant à ce canal. Ce travail se fait en irradiant chaque détecteur individuellement avec un ou plusieurs faisceaux de neutrons mono-énergétiques d'énergie connue. L'objectif de cet étalonnage est de calculer la "droite d'étalonnage" propre au compteur.

Pour le ROSPEC, l'étalonnage en énergie de chaque compteur a été fait par le constructeur BTI. Les droites d'étalonnage sont données dans un ensemble de fichiers fourni avec le logiciel de déconvolution. Elles sont de la forme :

$$E_p = Cal \times (N + BB) \tag{3.20}$$

où E_p est l'énergie des protons de recul en MeV, Cal et BB sont les deux paramètres d'étalonnage donnant la relation linéaire entre le numéro de canal N et l'énergie E_p.

Donnons l'exemple des compteurs proportionnels d'un des ROSPEC employés. Pour chaque détecteur, la droite d'étalonnage avec une *région d'intérêt* déterminée expérimentalement. Cette région d'intérêt, notée *ROI*, donne le domaine d'énergie des protons pour

lequel les mesures sont faites. Les coups mesurés en dehors de cette région ne sont pas comptabilisés et ne sont pas pris en compte dans le processus de déconvolution. La borne inférieure est définie en éliminant les canaux où la perturbation des photons γ est importante (figure 3.3).

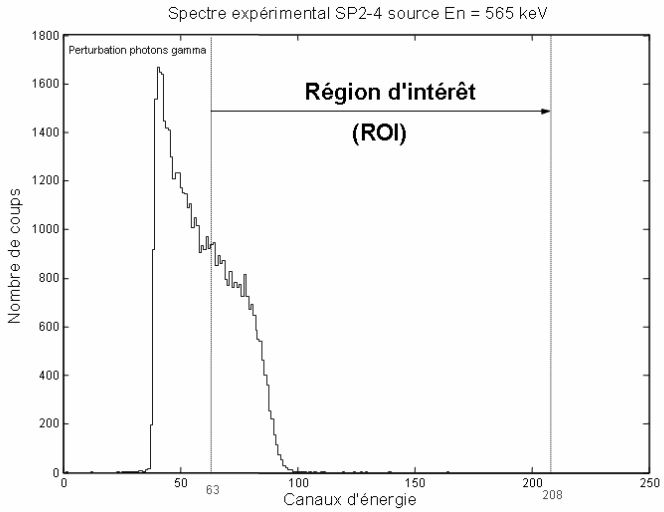


Fig. 3.3 – Exemple de détermination de la région d'intérêt pour un spectre de protons de recul du compteur SP2-4 irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie 565 keV.

La borne supérieure est déterminée en tenant compte de l'effet de paroi dans le compteur proportionnel. Nous verrons dans la suite comment étudier cet effet et déterminer son influence sur les spectres de protons de recul. Les données présentées dans le tableau 3.1 concernent le ROSPEC étudié dans cette partie.

Compteur	SP2-1	SP2-4	SP2-10	SP6
Droite d'étalonnage (Cal ;BB)	(0,00133 ; -16)	(0,0034 ; -11,1)	(0,0099 ; -16,8)	(0,028 ; -16)
Région d'intérêt (ROI)	52 - 198	58 - 209	55 - 169	56 - 195

Tab. 3.1 – Droites d'étalonnage et ROI des compteurs étudiés

3.1.6 Phénomènes perturbant la détection

3.1.6.1 Spectre de proton de recul pour un compteur proportionnel idéal

Le spectre de protons de recul pour un compteur proportionnel sphérique idéal, c'est-à-dire un compteur qui ne subit aucun effet parasite perturbant la détection des neutrons, a une forme rectangulaire (chapitre 1). Toutefois, pour étudier le spectre de protons de recul pour un compteur réel placé dans les conditions d'irradiation normales, il faut prendre en compte un certain nombre de phénomènes que nous allons détailler par la suite.

3.1.6.2 L'effet de paroi

Selon la taille du compteur, l'énergie et la direction des neutrons, les protons de recul peuvent échapper du volume détecteur et ne perdent pas entièrement leur énergie dans la zone active de détection. Les événements correspondants ne sont pas perdus mais l'énergie déposée est plus faible que celle du proton de recul. Ce phénomène s'appelle l'effet de paroi : il fera l'objet d'une étude spécifique appliquée aux compteurs du ROSPEC.

3.1.6.3 L'effet du champ électrique

Le champ électrique provoque l'accumulation de charges négatives sur l'anode. Les lignes de champs sont déformées aux extrémités de l'anode et la valeur du champ électrique y est moins élevée que dans le reste du volume. Par conséquent, la multiplication gazeuse est moins importante dans ces régions. Comme le nombre de charges collectées est proportionnel à l'énergie déposée par le proton, l'énergie déposée lors de l'événement dans la région considérée est plus faible que l'énergie totale déposée par le proton.

Les effets de paroi et du champ électrique provoquent une augmentation du nombre d'événements de basse énergie et une diminution des événements correpondant aux hautes énergies. Cela a pour conséquence d'augmenter la pente de la distribution des impulsions des protons de recul par rapport à la distribution rectangulaire idéale (voir figure 3.4). Nous aurons l'occasion de revenir sur l'effet du champ électrique ultérieurement dans ce chapitre.

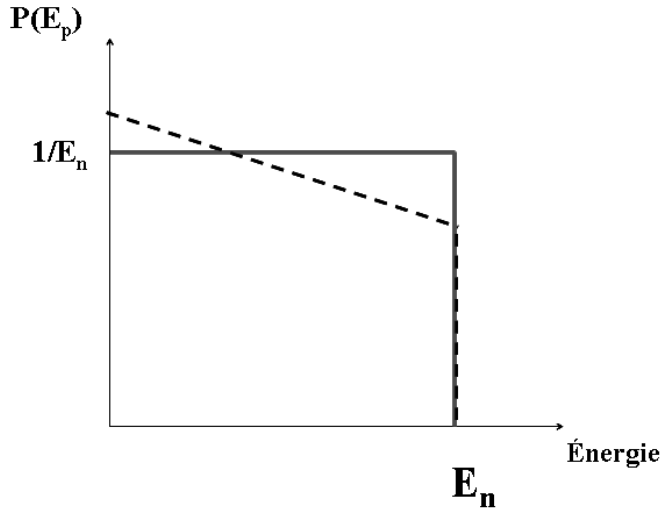


Fig. 3.4 – Distribution d'impulsions des protons de recul : idéale (–) et tenant compte du champ électrique et de l'effet de paroi (- -)

3.1.6.4 L'influence des carbones de recul

Le compteur SP6 du ROSPEC contient du méthane, ce qui signifie que des noyaux de carbone sont susceptibles de subir des interactions de la part des neutrons incidents. La fraction d'énergie transférée par le neutron au noyau de carbone (0,284) est faible comparée à celle qu'il transfère aux noyaux d'hydrogène. De plus, la perte d'énergie moyenne $\bar{w}_p$ du carbone est faible. De ce fait, les noyaux de carbone de recul ne contribuent que dans la partie basse énergie de la distribution d'impulsions (jusqu'à $\frac{E_n}{5}$: voir figure 3.5).

3.1.6.5 D'autres effets perturbateurs

Pour une énergie de neutrons supérieure à 5 MeV, interviennent des réactions dans l'acier inoxydable qui sont en compétition, telles que (n,p), (n,n'p), (n,d) et (n,α). Des réactions avec les additifs gazeux telles que Ar(n,α), Ar(n,p), C(n,α) et (n,2nα) peuvent avoir une certaine influence entre 6 et 8 MeV [79]. Toutefois, dans le cas présent, ces effets ne se produisent qu'au-delà du domaine d'énergie couvert par les compteurs proportionnels du ROSPEC. Il ne sera donc pas nécessaire d'en tenir compte dans la détermination des fonctions de réponse.

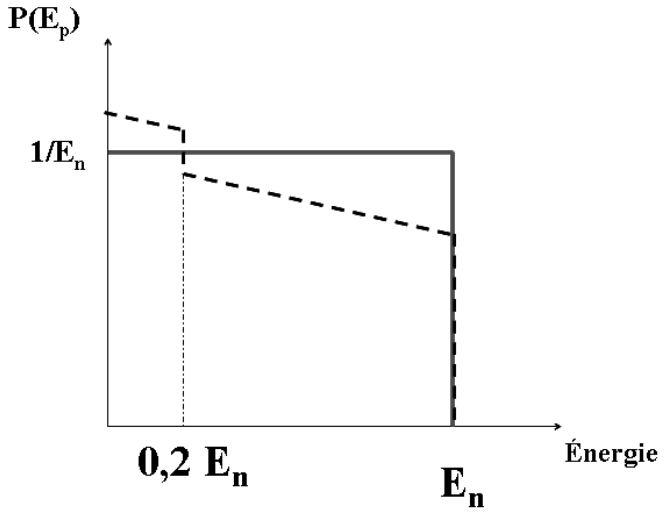


Fig. 3.5 – Distribution d'impulsions des protons de recul : idéale (–) et tenant compte du champ électrique, de l'effet de paroi et de la contribution des carbones de recul (- -)

3.1.6.6 Écriture de la fonction de réponse réelle

Les effets mentionnés précédemment entraînent la modification de la fonction de réponse idéale. En tenant compte de ces effets, la fonction de réponse réelle est écrite comme suit [90] :

$$R(E) = \int d^3\vec{r} \int d\vec{\Omega} \int dE' T(E', E' - E, \vec{r}, \vec{\Omega}) \tag{3.21}$$

où $\vec{r}$ est le vecteur position caractéristique de l'endroit où se produit l'interaction (n,p), Ω est l'angle solide à l'intérieur duquel est diffusé le proton de recul, E est l'énergie du proton lorsqu'il est produit, E' est l'énergie du proton lors de la mesure et T est la fonction de transition telle que :

$$T(E', E' - E, \vec{r}, \vec{\Omega}) = \int dE'' V(E', E'' - E, \vec{r}, \vec{\Omega}) W(E', E' - E'', \vec{r}, \vec{\Omega}) \tag{3.22}$$

où V est la fonction amplification gazeuse, W est la fonction effet de paroi.

3.2 Effet de paroi

3.2.1 Définition

Cet effet intervient lors de la cession partielle de l'énergie d'une particule secondaire (par exemple un proton de recul) au milieu détecteur, c'est-à-dire si celle-ci s'arrête dans la paroi du compteur. La collision de cette particule avec la paroi entraîne une perte d'énergie pour le signal de sortie final car l'ionisation du milieu gazeux sera incomplète. La relation entre l'énergie des protons et les charges collectées par l'anode est rendue plus complexe à cause de l'effet de paroi [91].

3.2.2 Analyse générale de l'effet de paroi

La théorie de l'effet de paroi dans le compteur proportionnel a été développée par Snidow et Warren. Ce travail présente une méthode précise pour calculer l'effet de paroi pour un compteur sphérique sans "zone morte" et pour un compteur cylindrique de longueur finie avec ou sans "zone morte", lors de la mesure de flux isotropiques de neutrons [92]. La "zone morte" est une région de non-détection du compteur.

L'analyse part du cas plus général du compteur cylindrique. Le compteur est divisé en trois régions cylindriques droites. La région centrale (ou région sensible) est une zone où la multiplication gazeuse est supposée constante. Les deux régions extrêmes sont des zones où la multiplication est supposée nulle (voir figure 3.6). Dans cette partie de l'étude, nous allons donc négliger les non-uniformités locales du champ électrique interne.

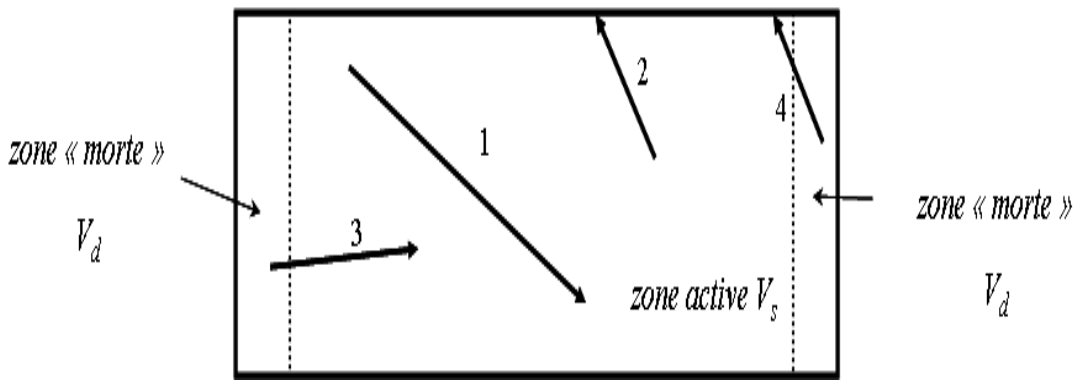


Fig. 3.6 – Découpage du compteur cylindrique en régions distinctes. Catégories d'événements différents pouvant se produire à l'intérieur du compteur.

En se basant sur cette représentation géométrique du compteur, nous pouvons distinguer quatre catégories d'événements :

- le proton est créé dans le volume sensible et y perd la totalité de son énergie (événement 1),
- le proton est mis en mouvement dans la partie sensible du compteur et heurte la paroi, ou entre dans une région non-détectrice (événement 2),
- le proton entame sa migration dans les zones "mortes" puis s'arrête dans le volume sensible (événement 3),
- le proton est créé dans une région "morte" et heurte la paroi dans la région sensible, ou traverse cette dernière pour finir son parcours dans une autre zone "morte" (événement 4).

Les fonctions de probabilité des parcours dans les diverses régions, en tant que variables indépendantes, ont été calculées pour chaque catégorie d'événement définie précédemment avec les hypothèses suivantes :

1) La trace du proton part de n'importe quel point du volume du détecteur de façon équiprobable (distribution uniforme).
2) La trace du proton part dans n'importe quelle direction (distribution isotropique).

Les protons ayant un parcours R_0 et une énergie E_0, la fonction de réponse (notée $Sn(E, E_0)$ par commodité) tenant compte des quatre possiblités de migration est donnée en terme de fonctions de probabilité de longueur de trace dans la relation 3.23 :

$$\begin{aligned} Sn(E,E_0) = V_s\ F(R_0)\ \delta(E-E_0) + V_s\ \Big(\frac{dR}{dE}\Big)_{E-E_0} N[R_0 - R(E-E_0)] \\ + 2\ V_d \Big(\frac{dR}{dE}\Big)_E G(R_0 - R(E), R_0) \\ + 2\ \int_E^{E_0-E} V_d \Big(\frac{dR}{dE}\Big)_{E_0-E'-E} \Big(\frac{dR}{dE}\Big)_{E_0-E} M[R_0 - R(E_0-E), R_0 - R(E_0-E'-E)]dE \end{aligned} \tag{3.23}$$

où :

- $\delta(E - E_0)$ est la fonction de Dirac,
- $F(R_0)$ est la probabilité qu'un proton dissipe la totalité de son énergie dans le volume sensible,
- $N(l)dl$ est la probabilité que la longueur de trace du proton dans le volume sensible soit comprise entre l et dl ; $l = R_0 - R(E_0 - E)$ est le parcours d'un proton qui a

pris naissance dans le volume sensible et qui y dépose une énergie $E < E_0$,

- $G(l', l)dl'$ est la probabilité que la longueur de la trace soit comprise entre l' et $l' + dl'$ dans la région "morte" ; $l' = R_0 - R(E)$ est le parcours du proton qui perd une énergie E dans cette région,
- $M(l', l)dl'dl$ est la probabilité qu'un proton de parcours l, mis en mouvement dans la zone "morte", ait une trace dans cette région comprise entre l' et $l' + dl'$,
- $\frac{dR}{dE}$ est l'inverse de la perte d'énergie par unité de longueur.

Cette relation est appelée algorithme de Snidow. Elle a été appliquée avec succès aux géométries cylindriques pour déterminer leurs fonctions de réponse [93].

3.2.3 Application de l'algorithme de Snidow à la géométrie sphérique

Dans le compteur sphérique de rayon a, nous allons supposer qu'il n'y pas de zone de non-détection à ce stade de l'étude. La relation 3.23 est simplifiable lorsque nous appliquons le raisonnement de Snidow à la géométrie sphérique [92]. Les expressions de $N(l)$ et $F(l)$ deviennent respectivement :

$$N(l(E_p)) = \frac{3}{4}a^{-1}\Big\{1 - \frac{1}{4}\frac{l(E_p)^2}{a^2}\Big\} \tag{3.24}$$

$$F(l(E_p)) = 1 - \frac{3}{4}\Big(\frac{l(E_p)}{a}\Big) + \frac{1}{16}\Big(\frac{l(E_p)^3}{a^3}\Big) \tag{3.25}$$

où $l(E_p)$ est le parcours du proton. Ce parcours dépend lui-même de l'énergie du proton E_p. $F(l(E_p))$ exprime la fraction de protons perdant la totalité dans le volume du compteur. Dans le compteur sphérique sans zone "morte", nous distinguons non plus quatre possibilités de migration des protons mais deux. Dans le premier scénario de migration, le proton s'arrête complètement dans le volume du compteur et y dépose la totalité son énergie. Dans le deuxième scénario, le proton ne dépose qu'une partie de son énergie dans le volume du compteur et perd le reste de son énergie en heurtant la paroi du détecteur.

La fonction de réponse Sn pour un compteur sphérique irradié par des neutrons monocinétiques d'énergie E_n s'écrit donc comme suit :

$$Sn(l(E_p)) = \frac{F(l(E_p))}{E_n} + \frac{N(l(E_n - E_p) - l(E_p))l(E_n - E_p)}{E_n} \tag{3.26}$$

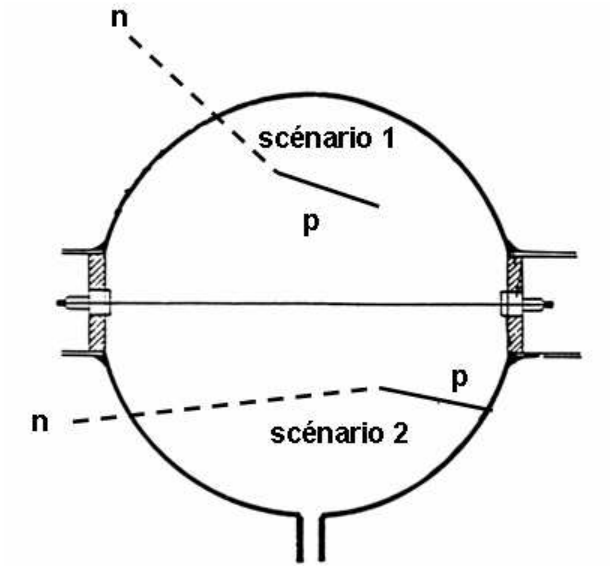


Fig. 3.7 – Scénarios de migration du proton de recul dans un compteur sphérique gazeux

3.2.3.1 Détermination du parcours $l(E_p)$ des protons dans les milieux gazeux

Nous allons appliquer la méthode mise au point par Snidow à nos compteurs proportionnels SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6. Pour un compteur donné, les données nécessaires sont les valeurs de E_p pour chaque canal d'énergie (obtenues grâce à la droite d'étalonnage $E_p = f(N, BB)$) et les valeurs de parcours de protons pour chaque énergie E_p calculée précédemment.

Nous avons choisi d'utiliser le code SRIM [94] développé par Ziegler et Biersack.

Nous calculons l'expression analytique de la fonction de réponse du :

- compteur SP2-1 lorsqu'il est irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 146$ keV. Le domaine d'énergie des protons s'étend de 44,6 à 226,04 keV et est découpé en 144 canaux de largeur 1,26 keV. La fonction de réponse de ce détecteur est déterminée de la même manière avec $E_n = 250$ keV.
- compteur SP2-4 lorsqu'il est irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 250$ keV. Le domaine d'énergie des protons s'étend de 164,83 à 749,7 keV et est découpé en 143 canaux de largeur de 4,09 keV. La fonction de réponse de ce détecteur est déterminée de la même manière avec $E_n = 565$ keV.
- compteur SP2-10 lorsqu'il est irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 565$ keV. Le domaine d'énergie des protons s'étend de 378,3 à

1552,8 keV et est découpé en 145 canaux de largeur 8,1 keV. La fonction de réponse de ce détecteur est déterminée de la même manière avec $E_n = 1,2$ MeV et $E_n = 2,5$ MeV.

- compteur SP6 lorsqu'il est irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 2,5$ MeV. Le domaine d'énergie des protons s'étend de 1224 à 5482,5 keV et est découpé en 167 canaux de largeur 25,5 keV. La fonction de réponse de ce détecteur est déterminée de la même manière avec $E_n = 4,85$ MeV.

3.2.3.2 Calcul des spectres de protons de recul avec MCNPX

Le code de transport de particules étendu MCNPX est utilisé pour calculer les distributions d'impulsions des protons de recul dans les quatres compteurs étudiés. En effet, MCNPX permet de suivre notamment les particules chargées. Il convient tout à fait à la simulation du transport des protons dans le milieu gazeux. La plateforme utilisée est Linux.

La géométrie du détecteur utilisée est celle décrite dans le chapitre 2. Chaque compteur étudié est décrit en utilisant la carte *macrobody* SPH :

SPH X Y Z R

où X,Y et Z sont les coordonnées du centre de la sphère et R est son rayon. L'univers défini pour ce calcul est enfermé dans une sphère de 200 cm de rayon. Dans la sphère représentant le détecteur (incluant la paroi extérieure en acier inoxydable), toutes les particules créées (neutrons et protons représentés respectivement par n et h dans le code) ont une importance égale à 1, ce qui signifie que ces particules seront toutes suivies. En dehors du détecteur, c'est-à-dire dans une région inintéréssante du point de vue de la problématique, l'importance des protons est fixée à 0. Le temps de calcul est ainsi réduit.

La source de neutrons monocinétique est créée en utilisant une carte SDEF. Dans cette carte, tous les paramètres sont indiqués :

SDEF PAR=n POS= a b c ERG=E VEC=V_x V_y V_z

où a, b et c sont les coordonnées de la position de la source, E est l'énergie des neutrons émis par la source et V_x, V_y et V_z sont les coordonnées du vecteur donnant la direction des

neutrons partant de la source. NPS à la fin du fichier d'entrée définit le nombre d'histoires utilisées pour mener le calcul. Il est choisi de telle manière que les distributions calculées aient une statistique suffisante.

Il est nécessaire de spécifier un certain nombre de paramètres physiques utilisés dans la simulation. Pour ce faire, deux cartes PHYS doivent être créées : une carte PHYS :n donnant les paramètres physiques applicables aux neutrons et une carte PHYS :h donnant ceux applicables aux protons. La première carte comporte les paramètres suivants :

PHYS :n Emax Ean IUNR DNB TABL FISM RECL

Emax est l'énergie de neutron maximale permise (par défaut, Emax=100 MeV), Ean est l'énergie en-deçà de laquelle la capture est analogue. Lors de la capture analogue (qui constitue un artifice mathématique pour le code), la particule est "éliminée" par le programme avec une probabilité $\frac{\sigma_a}{\sigma_T}$, où σ_a et σ_T sont respectivement les sections efficaces d'absorption et la section efficace totale de la collision entre le noyau et la particule incidente. Pour toutes les particules "tuées" par capture analogue, l'énergie totale de la particule est déposée dans la cellule où a eu lieu la collision. IUNR indique s'il faut utiliser la table du traitement des probabilités de résonances non résolues. Comme le domaine des résonances est résolu en dessous de 20 MeV dans cette étude, IUNR=0. Le paramètre DNB indique s'il y a production analogue de neutrons retardés à partir d'une fission. Comme il n'y a pas de fission dans ce problème, DNB=-1. Le paramètre TABL indique l'énergie au-delà de laquelle les librairies de sections efficaces ne sont plus utilisées (au-dessus de cette énergie, ici TABL=20 MeV, des modèles physiques sont utilisés). Le paramètre FISM indique s'il y a échantillonnage des neutrons de fission ; ici, FISM=0. Enfin, RECL indique le nombre d'ions légers (les protons, ici) par noyau diffuseur. RECL vaut 1 pour le calcul que nous voulons mener.

La carte PHYS :h s'écrit comme suit :

PHYS :h Emax Ean TABL J ISTRG J RECL

Emax fixe la limite supérieure pour l'énergie de protons permise (par défaut Emax=100 MeV). Ean = 20 MeV est l'énergie en deçà laquelle la capture des protons est analogue. TABL = 20 MeV indique l'énergie au-delà de laquelle les modèles physiques sont utilisés pour le transport des protons. J est un mot-clé inutilisé. ISTRG=0 est un paramètre qui indique

l'utilisation ou non du modèle de Vavilov [95]. RECL est le nombre d'ions légers de recul par noyau diffuseur (diffusion élastique). Nous considérons que les protons ne créent pas de protons supplémentaires par diffusion, mais déposent leur énergie dans le compteur, donc RECL=0.

La carte CUT permet de définir la coupure correspondant à l'énergie minimale dans MCNPX. Si cette coupure en énergie minimale est placée par défaut trop haute, il est possible d'entrer une énergie plus basse pour le suivi des particules. Pour pouvoir obtenir l'énergie déposée par les protons jusqu'à une limite inférieure de quelques keV, la valeur par défaut de la coupure en énergie minimale est modifiée comme suit :

CUT :h T E WC1 WC2

T est la coupure en temps exprimée en "shakes" (1 shake = 10^{-8}). Ce paramètre n'est pas utilisé dans nos calculs (T=J). E est la coupure en énergie minimale. Les paramètres WC1 et WC2 indiquent les coupures en poids pour les neutrons et les protons (comme les captures de ces particules sont analogues, WC1 et WC2 sont fixés à zéro). En dessous de l'énergie de coupure, le proton est "tué" par le code. Nous choisissons de fixer cette coupure à 1 keV.

La carte F8 est utilisée pour suivre les protons de recul. F8 est un comptage de la taille d'impulsions des particules. La carte F8 est écrite comme suit :

F8 :m i

où m représente le type de particule qui dépose son énergie dans la cellule ou zone i. Pour calculer les distributions en énergie des tailles d'impulsion, il est nécessaire de définir le découpage énergétique (en d'autres termes, les canaux d'énergie) grâce à la carte E8 :

E8 E1 $\ldots E_i \ldots E_m$ i= 1 $\ldots$ m

où E_i est la borne supérieure (en MeV) du $i^{ième}$ canal d'énergie. Certaines précautions sont à prendre dans la définition de la carte E8. Selon le manuel, il est nécessaire de créer un canal d'énergie 0 pour les contributions de capture négatives et un canal epsilon (à 1×10^{-5} MeV) pour comptabiliser les scores provenant des particules qui traversent

le détecteur sans déposer d'énergie. Après ces deux canaux, les bornes supérieures des canaux d'énergie décrivant le spectre d'énergie sont donnés.

Pour calculer correctement le spectre énergétique des tailles d'impulsions des protons de recul, il est nécessaire de modifier le comptage F8. Il est ainsi possible de recourir à une option appelée PHL (Pulse Height Light), dont voici un exemple :

F6 :h 100
F8 :h 100
E8 0 1E-5 1 2 3
FT8 PHL 1 6 1 0

Les protons de recul laissent une contribution (trace par trace) dans le comptage F6 :h qui calcule le dépôt d'énergie dans la cellule 100. Pour chaque trace dans cette cellule, le comptage F6 :h est utilisé pour déterminer dans quel canal d'énergie E8 va être créée une impulsion. Si l'énergie déposée par un proton de recul est de 2,5 MeV par exemple, l'impulsion va être créée dans le canal compris entre 2 et 3 MeV. Ainsi modifié, le comptage F8 permet de calculer le spectre d'énergie des impulsions des protons de recul (appelé plus simplement spectre de protons de recul).

3.2.3.3 Mesures expérimentales sur faisceaux de neutrons monocinétiques

Des mesures avec les compteurs proportionnels du ROSPEC ont été faites en les irradiant tour à tour avec des faisceaux de neutrons monocinétiques. Ces expériences ont été entreprises par le Laboratoire National de Los Alamos aux États-Unis (LANL). Les résultats nous ont été gracieusement communiqués par le Dr. Tom Mc Lean.

3.2.4 Résultats

3.2.4.1 Le compteur SP2-1

L'expression analytique de Snidow est calculée pour le compteur SP2-1 irradié avec un faisceau neutronique mono-énergétique de 146 keV. Parallèlement, le spectre de protons de recul est déterminé avec MCNPX en modélisant le détecteur avec une source monoénergétique de 146 keV. Ces deux informations sont confrontées avec les résultats

expérimentaux sur la figure 3.8. Il est à rappeler que le compteur SP2-1 est sensible aux neutrons d'énergies comprises entre 50 et 250 keV.

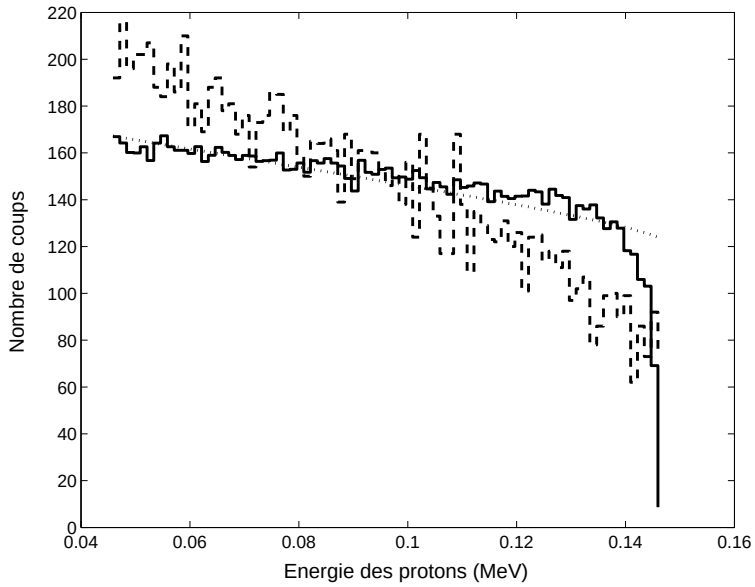


Fig. 3.8 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 146$ keV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-1 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

Nous remarquons qu'il y a une très bonne concordance entre le spectre de protons de recul prévu par l'algorithme de Snidow et celui obtenu avec le code MCNPX. En revanche, nous observons que le spectre expérimental de protons de recul présente une pente différente des deux spectres précédents. Le spectre expérimental souffre d'une faible statistique de comptage, ce qui conduit à des incertitudes statistiques importantes.

Le spectre de protons de recul a été également mesuré par le compteur SP2-1 lorsqu'il est irradié par un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie de 250 keV. Un calcul du spectre de protons de recul par l'algorithme est entrepris en déterminant cette fois-ci les parcours suivants $\mathrm{R}(E_p)$ et $\mathrm{R}(E_n - E_p)$ pour $0 < E_p < 250$ keV et $E_n = 250$ keV. La simulation du spectre de protons de recul par MCNPX se fait en changeant simplement le paramètre énergie (ERG) dans la carte de définition SDEF.

Les résultats sont présentés figure 3.9. Une très bonne concordance entre l'expression analytique de Snidow et le calcul MCNPX est affichée toutefois les résultats expérimentaux s'éloignent des deux spectres calculés, notamment pour une énergie inférieure à 100 keV. Le spectre expérimental présente une statistique de comptage très faible (de l'ordre de 40

coups par canal), ce qui le rend peu fiable dans ce cas. Il est important de noter que la pente (Snidow et MCNPX) est plus importante à 250 keV qu'à 146 keV, car le parcours des protons de recul croît avec l'énergie, augmentant ainsi l'effet de paroi.

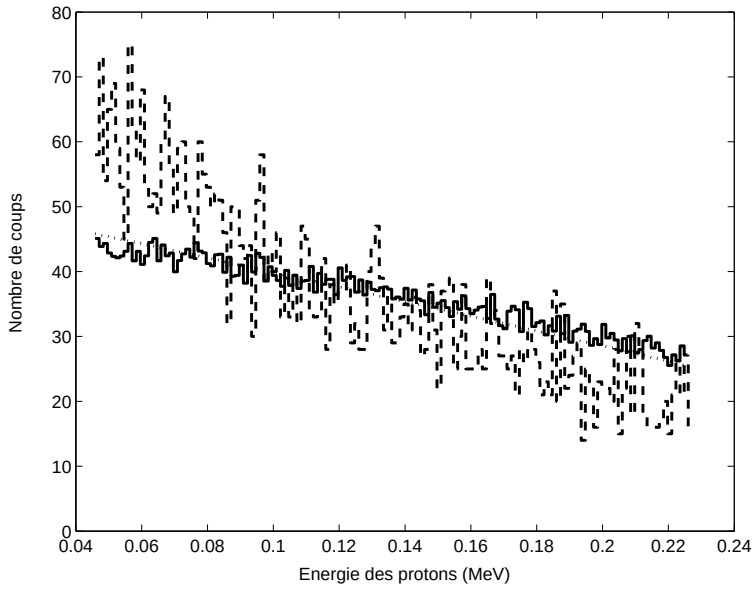


Fig. 3.9 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 250$ keV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-1 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

3.2.4.2 Le compteur SP2-4

Le compteur SP2-4, sensible aux neutrons d'énergies comprises entre 150 et 700 keV, est irradié avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 250$ keV dans une première expérience. L'expression analytique de Snidow est calculée en déterminant les parcours des protons dans de l'hydrogène à la pression de 4 atmosphères aux énergies E_p et $E_n - E_p$ avec $164,827 \text{ keV} < E_p < 246,627 \text{ keV}$. Le spectre de protons de recul est simulé avec MCNPX. Les résultats sont présentés sur la figure 3.10.

Les résultats de la simulation Monte Carlo concorde bien avec ceux obtenus avec l'expression analytique de Snidow. La courbe expérimentale est assez proche des deux autres courbes bien que présentant globalement une pente différente.

Le compteur SP2-4 est également étudié en utilisant cette fois-ci, un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 565$ keV. Un travail de comparaison avec la simu-

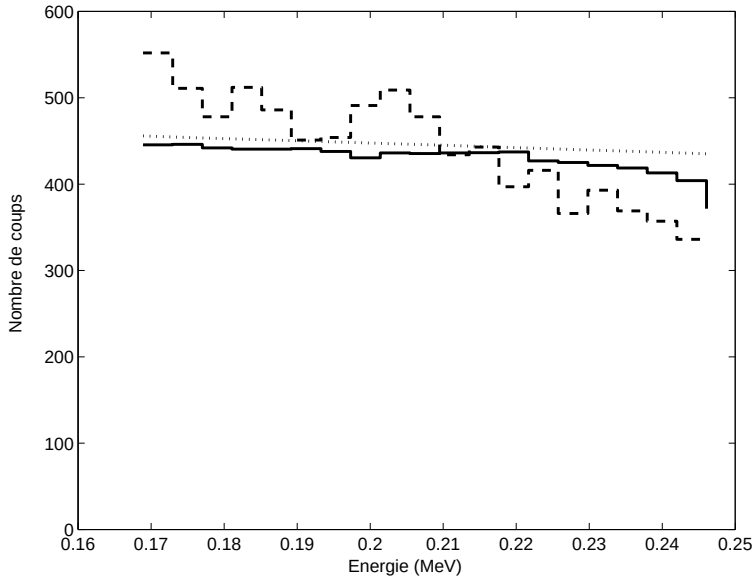


Fig. 3.10 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 250$ keV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-4 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

lation Monte Carlo et l'expression analytique de Snidow est alors effectué. Les résultats sont présentés dans la figure 3.11.

Les résultats obtenus par la simulation MCNPX et ceux déterminés avec l'algorithme de Snidow sont en très bon accord. Par contre, le spectre de protons de recul expérimental est relativement éloigné des deux courbes précédentes, présentant comme pour les cas étudiés précédemment, une pente différente. Nous pouvons faire la remarque que précédemment, à savoir que la pente Snidow et MCNPX est plus importante à 565 keV qu'à 250 keV pour les mêmes raisons.

3.2.4.3 Le compteur SP2-10

Le compteur SP2-10 a été étudié expérimentalement avec deux faisceaux de neutrons monocinétiques d'énergies respectives 1,2 MeV et 2,5 MeV. Les spectres de protons de recul ont été calculés avec MCNPX et ont été conjointement déterminés en utilisant l'algorithme de Snidow. La méthode suivie est la même que celle employée pour les compteurs SP2-1 et SP2-4. Les résultats sont présentés dans les figures 3.12 et 3.13.

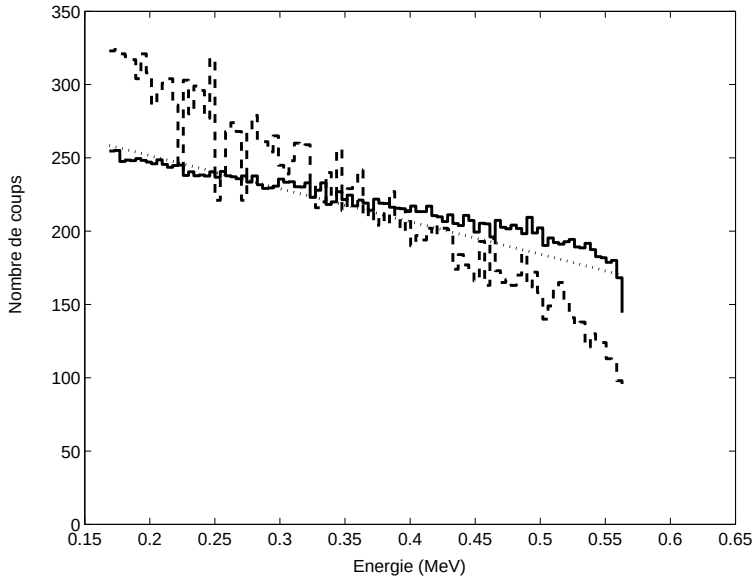


Fig. 3.11 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 565$ keV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-4 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

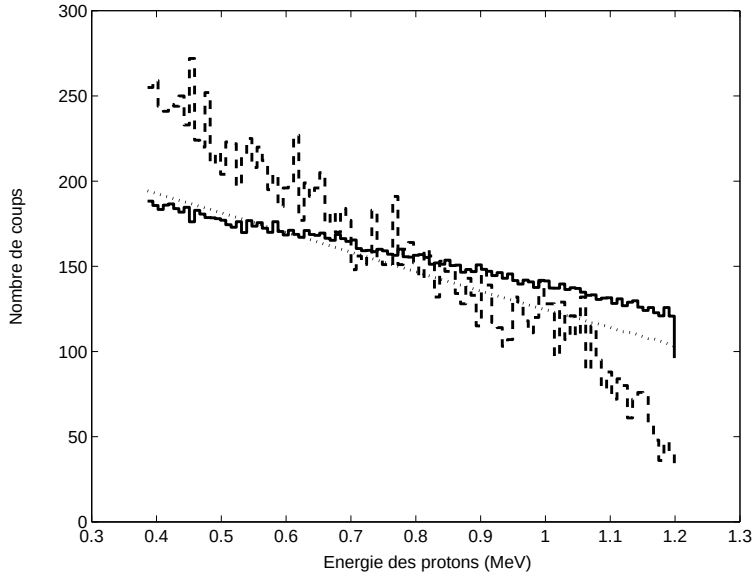


Fig. 3.12 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 1,2$ MeV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-10 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

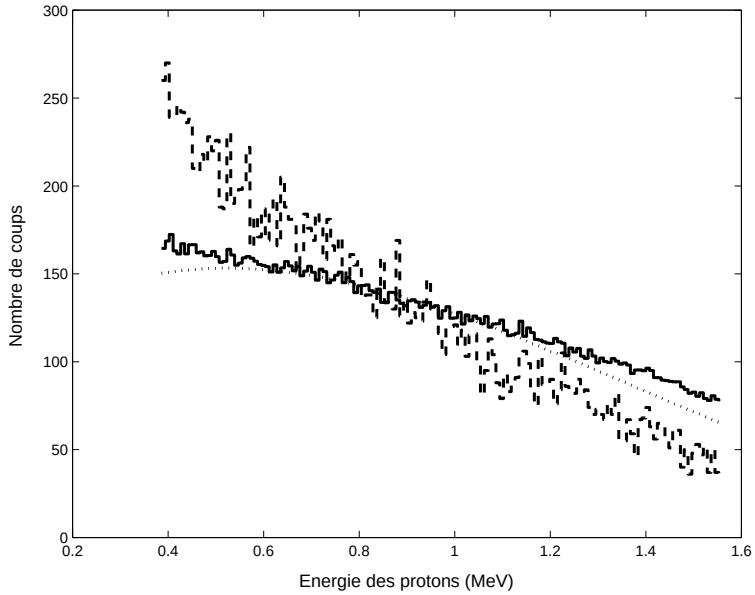


Fig. 3.13 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 2,5$ MeV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP2-10 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

Dans la figure 3.12, les spectres calculés avec MCNPX et la méthode de l'algorithme de Snidow sont en bon accord. Toutefois, le spectre de proton de recul prévu par Snidow s'éloigne quelque peu du spectre calculé avec MCNPX en particulier pour la partie haute énergie.

Dans la figure 3.13, nous remarquons que la courbe représentant le spectre prévu par l'algorithme de Snidow n'est plus une droite comme dans les cas précédents. Dans le domaine d'énergie considéré, à savoir au-delà de 1 MeV, les parcours des protons, en effet, ne varient plus de façon linéaire par rapport à l'énergie.

3.2.4.4 Le compteur SP6

Le compteur SP6 a été irradié avec des neutrons monocinétiques d'énergies $E_n = 2,5$ MeV et $E_n = 4,85$ MeV. Le calcul des parcours du proton dans le mélange gazeux a été plus délicat. Il s'agit, dans un premier temps, de calculer séparément le parcours du proton dans le méthane $R_{CH_4}(E_p)$ et dans l'argon $R_{Ar}(E_p)$ respectivement. Ensuite, il suffit d'en déduire le parcours du proton dans le mélange argon/méthane comme suit

[54] :

$$R_{Ar/CH_4}(E_p) = \Big(\frac{P_{Ar}}{R_{Ar}(E_p)} + \frac{P_{CH_4}}{R_{CH_4}(E_p)}\Big)^{-1} \tag{3.27}$$

Nous appliquons l'algorithme de Snidow pour déterminer l'expression analytique du spectre de protons de recul dans le compteur SP6. Elle est comparée aux résultats obtenus avec la simulation Monte Carlo et les spectres expérimentaux dans les figures 3.14 et 3.15.

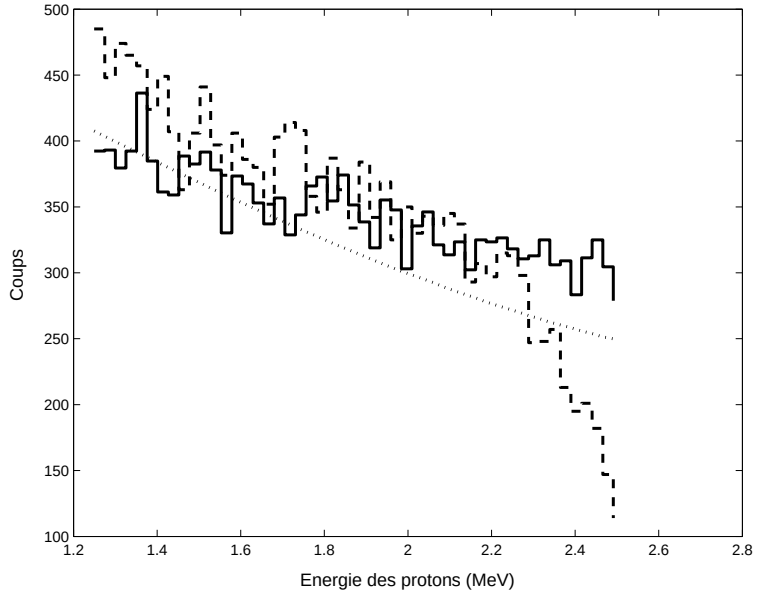


Fig. 3.14 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 2,5$ MeV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP6 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

Nous voyons d'après la figure 3.14 que les trois spectres de protons de recul sont en bonne corrélation jusqu'à environ 2,5 MeV. Au-delà de 2,5 MeV, la courbe expérimentale chute brutalement.

Dans la figure 3.15, le spectre prédit avec l'algorithme de Snidow est en total désaccord avec les autres spectres. Cela peut s'expliquer par la variation très rapide des parcours des protons dans ce domaine d'énergie. Le spectre obtenu avec MCNPX concorde de façon très satisfaisante avec le spectre expérimental.

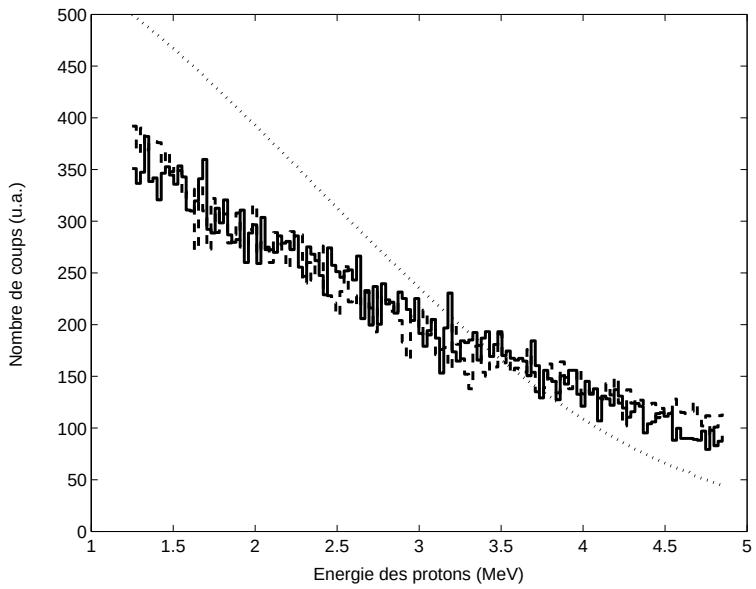


Fig. 3.15 – Spectres de protons de recul avec un faisceau de neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 4,85$ MeV : obtenu avec des neutrons monocinétiques sur le compteur SP6 (ligne discontinue), calculé avec MCNPX (ligne continue) et déterminé avec l'algorithme de Snidow (pointillés)

3.2.5 Bilan des résultats

L'effet de paroi a été étudié pour les compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6, qui couvrent le domaine d'énergie des neutrons de 50 keV à 4,5 MeV. C'est dire que le domaine d'étude de cet effet est vaste. L'algorithme de Snidow a été appliqué aux quatre compteurs et son efficacité dépend du compteur considéré et du domaine d'énergie envisagé. De façon générale, le spectre de proton de recul déterminé grâce à l'algorithme est en très bon accord avec la simulation MCNPX sauf pour le compteur SP6 irradié avec des neutrons monocinétiques d'énergie $E_n = 4,85$ MeV. Les parcours des protons au-delà de 2 MeV varient fortement et deviennent assez élevés. Le modèle de Snidow semble ne plus convenir pour les grands parcours de protons. L'analyse comparative entre la solution analytique de Snidow et MCNPX permet de valider ce dernier pour les compteurs proportionnels gazeux pour le calcul des spectres de protons de recul. MCNPX permet en effet de suivre les protons de recul jusqu'à une énergie de 50 keV en limite basse. Toutefois, pour les mélanges gazeux, des réserves sont à émettre concernant le pouvoir d'arrêt des protons tel qu'il calculé par MCNPX (en utilisant des bibliothèques de données donc la précision n'est pas véritablement connues) lorsque nous le comparons à la solution analytique de Snidow pour laquelle les parcours des protons de recul sont calculés de façon plus précise.

3.3 Le phénomène de downscattering

3.3.1 Définition

Les neutrons peuvent perdre une partie de leur énergie par diffusion élastique. En subissant plusieurs diffusions successives dans un milieu donné, le neutron peut perdre une grande partie de son énergie. Le neutron subit ainsi le phénomène de *downscattering*.

3.3.2 Prise en compte

Dans l'étude d'un spectromètre multi-détecteur, le phénomène de *downscattering* ne doit pas être négligé comme nous avons pu le constater dans le chapitre 2. En effet, les détecteurs du ROSPEC couvrent des domaines d'énergie voisins qui se recouvrent. Cela implique que les compteurs couvrant les énergies les plus basses peuvent détecter des neutrons de plus haute énergie ayant subi le *downscattering*.

Il paraît évident qu'en plus des neutrons appartenant au domaine d'énergie nominal auquel est sensible un compteur donné, celui-ci est également sensible aux neutrons d'énergie supérieure. Ces derniers vont donc laisser une contribution dans la distribution d'impulsions finale dont il faudra tenir compte pour caractériser le détecteur.

Un exemple de correction de l'effet du *downscattering* pour un multi-détecteur à 3 compteurs proportionnels est donné dans la référence [79]. L'effet du *downscattering* est également abordé dans l'optique de la déconvolution dans la référence [91].

Des fonctions de réponse doivent être calculées non seulement pour les énergies neutroniques de prédilection du compteur mais également à des énergies beaucoup plus élevées. Pour notre part, la correction de l'effet de *downscattering* se fera dans le cadre de la détermination des matrices de réponse des compteurs proportionnels SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6 dans le chapitre 4.

3.4 Champ électrique et multiplication gazeuse

3.4.1 Particularité de l'amplification gazeuse dans un compteur proportionnel sphérique

Un des critères du cahier de charges de la conception du compteur proportionnel sphérique était de garder le champ électrique constant le long du fil anodique (malgré la cathode sphérique), de telle façon que les variations de l'amplification gazeuse n'influencent pas le spectre mesuré. Cependant, au voisinage des supports de l'anode, où le champ électrique tombe à zéro, il y a forcément une région intermédiaire à amplification réduite. En fait, l'endroit où l'ionisation est insuffisamment amplifiée, a été évaluée à 10% du volume total du compteur [90].

L'effet de l'amplification gazeuse a été mise en évidence expérimentalement [64] [66], en comparant les résultats obtenus avec un calcul ne tenant compte que de l'effet de paroi [92]. Le désaccord entre les fonctions de réponse mesurées et calculées devient particulièrement prononcé aux faibles énergies neutroniques, c'est-à-dire aux faibles parcours de proton de recul.

3.4.2 Ionisation dans le gaz : la théorie de Townsend

Le transport de charges dans le gaz se fait au travers du mouvement des électrons et des ions. Le passage de la particule ionisante dans le gaz provoque en effet la création de paires d'ions. Lorsque leur énergie se réduit à quelques électronvolts, les électrons commencent à dériver à travers le gaz, sous l'influence du champ électrique appliqué, avec une vitesse qui dépend de la valeur du champ électrique, de la pression du gaz et de sa composition [96]. Les cations ainsi formés, vont se mouvoir sous l'influence du champ électrique, dans la direction opposée, mais à une vitesse plus faible que les électrons.

3.4.2.1 Le régime de Townsend

Considérons un système composé d'une anode et d'une cathode aux bornes desquelles, une tension est appliquée. Lorsque l'intensité du courant est mesurée en fonction de la tension, il est possible d'observer différents régimes. Pour une valeur assez élevée de la

tension appliquée, un régime apparaît au cours duquel le nombre d'électrons secondaires évolue de façon exponentielle par rapport au nombre d'électrons primaires. Ce régime est appelé régime de *Townsend*. Il démarre à une tension seuil qui dépend de la taille du compteur, de la pression du gaz et de sa composition [40].

3.4.2.2 La multiplication gazeuse

Le processus d'amplification du signal dans un compteur proportionnel *via* le processus des avalanches de Townsend près du fil anodique est appelé multiplication gazeuse. Le processus de multiplication gazeuse, qui est généralement basé sur les cascades électroniques, est exprimé dans l'équation de Townsend [97] :

$$\frac{dn}{n} = \alpha dx \tag{3.28}$$

où α est le premier coefficient de Townsend et est défini comme le nombre moyen d'électrons secondaires produits par un électron libre par centimètre de sa longueur de parcours, n est le nombre d'électrons et x est la distance sur laquelle se produit l'avalanche électronique.

3.4.2.3 Le premier coefficient d'ionisation de Townsend α

eux hypothèses doivent être faites pour trouver une expression simple pour α. Ces hypothèses, bien que difficilement justifiables, permettent d'avoir une expression de α très proche de la valeur calculée rigoureusement [40] :

1. L'électron ionisant démarre entre deux collisions avec une vitesse dont la composante dans la direction du champ est nulle. Cela signifie qu'il perd toute son énergie cinétique gagnée grâce au champ électrique, au profit de l'atome ou de la molécule à chaque collision.
2. La probabilité d'ionisation par collision vaut 1 tant que l'énergie cinétique de l'électron est supérieure ou égale à l'énergie d'ionisation de l'atome.

Selon ces deux hypothèses, un électron va ioniser un atome au cours d'une collision quand son énergie cinétique, gagnée pendant son parcours libre, est égale à l'énergie d'ionisation eV_i de l'atome. Si λ_i est le parcours libre de l'électron dans la direction du champ électrique, alors

$$eE\lambda_i \geq eV_i \tag{3.29}$$

où E est la valeur du champ électrique uniforme, qui ne varie pas pendant le temps et e est la charge de l'électron. Ce qui conduit à :

$$E\lambda_i \geq V_i \tag{3.30}$$

Le libre parcours minimum qui peut causer une ionisation selon les hypothèses précédentes est :

$$\lambda_i = \frac{V_i}{E} \tag{3.31}$$

Parmi tous les longueurs de libres parcours possibles, la probabilité qu'un libre parcours soit supérieur ou égal à λ_i est déterminée par la fonction de distribution des libres parcours. Le nombre de libres parcours, n, qui sont supérieurs ou égaux à x, est donné par :

$$n = n_0 \exp\left(\frac{-x}{\bar{\lambda}}\right) \tag{3.32}$$

où n_0 est le nombre total de libres parcours, ou de collisions. n et n_0 sont donnés par unité de longueur du libre parcours de la particule et $\bar{\lambda}$, le libre parcours moyen, est égal à $1/n_0$. La probabilité pour qu'un libre parcours soit $\geq x$ est donc :

$$\frac{n}{n_0} = \exp\left(-\frac{x}{\bar{\lambda}}\right) \tag{3.33}$$

Il est important de considérer les quantités n et $\bar{\lambda}$ selon leur composante parallèle à la direction du champ. Ainsi, n_E sera le nombre de libres parcours par unité de longueur dans la direction du champ et $\bar{\lambda}$ est le libre parcours moyen correspondant dans la direction du champ électrique $\vec{E}$. Si le nombre de libres parcours, ou de collisions, par unité de longueur le long de $\vec{E}$ est n_E, alors :

$$\bar{\lambda_E} = \frac{1}{n_E} \tag{3.34}$$

La relation entre $\bar{\lambda_E}$ et $\bar{\lambda}$ va dépendre de v, la vitesse de dérive de l'électron le long de la direction de $\vec{E}$. Cette relation peut être trouvée en considérant le nombre de collisions de l'électron par seconde. Ce nombre doit être le même, que ce soit en considérant un quelconque parcours ou celui le long du champ électrique $\vec{E}$, donc :

$$\frac{\bar{v}}{\bar{\lambda}} = \frac{v}{\bar{\lambda_E}} \tag{3.35}$$

Le nombre de collisions ionisantes provoquées par l'électron par unité de longueur le long de la direction du champ électrique $\vec{E}$ est :

$$\alpha = n_E \exp\left(-\frac{\lambda_{iE}}{\bar{\lambda_E}}\right) \tag{3.36}$$

ou

$$\alpha = \frac{1}{\bar{\lambda_E}} \exp\left(-\frac{\lambda_i}{\bar{\lambda}}\right) \tag{3.37}$$

Il a été montré que $\bar{\lambda}$ est proportionnel à $\frac{T}{p}$ [40]. Donc $\frac{1}{\bar{\lambda}} = Ap$ où A est une constante qui dépend de la température T. En substituant cette valeur et celle de λ_i d'après l'équation 3.31, il arrive :

$$\alpha = Ap \exp\Big(-\frac{V_i}{E\bar{\lambda}}\Big)\Big(\frac{\bar{v}}{v}\Big) \tag{3.38}$$

ou

$$\alpha = Ap \exp\Big(-\frac{ApV_i}{E}\Big) = Ap \exp\Big(-\frac{Bp}{E}\Big) \tag{3.39}$$

où $v \approx \bar{v}$ et $B = AV_i$. Alors, l'équation 3.39 s'écrit :

$$\frac{\alpha}{p} = A \exp\big(-\frac{Bp}{E}\big) \tag{3.40}$$

ce qui signifie que $\frac{\alpha}{p}$ est une fonction singulière de $\frac{E}{p}$. Donc, le nombre d'ionisations causé par un électron primaire dépend du produit $E\bar{\lambda}$ qui est l'énergie moyenne gagnée entre deux collisions successives. Il a été prouvé expérimentalement que pour les basses pressions, $\frac{\alpha}{p}$ ne dépend que du rapport $\frac{E}{p}$. Des expériences ont prouvé que l'équation 3.40 est valable pour un grand nombre de gaz pour un large domaine de $\frac{E}{p}$.

3.4.2.4 Expression du gain gazeux

En intégrant l'équation 3.28, il est possible de démontrer l'évolution exponentielle de l'avalanche électronique comme suit :

$$G \equiv \frac{n(x)}{n_0} = \exp(\alpha x) \tag{3.41}$$

où G est le gain du gaz, $n(x)$ est le nombre d'électrons pour une distance donnée x et n_0 est le nombre initial d'électrons.

Des expressions générales du gain du gaz basées sur les caractéristiques physiques des compteurs proportionnels ont été proposées dans la littérature [98] [99] [100]. L'expression de Diethorn suppose la linéarité entre α et E et peut être écrite comme suit :

$$\ln G = \frac{V}{\ln\left(\frac{b}{a}\right)} \cdot \frac{\ln 2}{\Delta V} \cdot \Big(\ln \frac{V}{pa \ln \frac{b}{a}} - \ln K\Big) \tag{3.42}$$

où G est le gain du gaz, V est le potentiel de l'anode, a est le rayon de l'anode, b est le rayon de la cathode, p est la pression du gaz, ΔV est la différence de potentiel entre les événements ionisants successifs, K est le minimum de $\frac{E}{p}$ nécessaire pour produire la multiplication gazeuse. Les paramètres de Diethorn pour les gaz les plus communément utilisés peuvent être trouvés dans la référence [5].

Une autre expression assez répandue est celle de Campion. Cette formulation s'appuie sur la relation :

$$\ln M = \frac{CV}{D \ln\left(\frac{a}{b}\right)} \Big[\exp - \frac{aDp \ln\left(\frac{b}{a}\right)}{V} - \exp - \frac{rDp \ln\left(\frac{b}{a}\right)}{V} \Big] \tag{3.43}$$

où C et D sont des constantes déterminées empiriquement pour les gaz étudiés [101].

3.5 Calcul du champ électrique dans les compteurs proportionnels sphériques

Le calcul du champ électrique dans un compteur proportionnel est un problème classique de l'électrostatique. Dans la configuration présente, la cathode est sphérique et portée à un potentiel nul. Il en est de même des tubes polaires. L'anode, quant à elle, est portée à un potentiel positif de quelques milliers de volts, cette valeur variant d'un compteur à l'autre en fonction de la pression du gaz. Les supports d'anode sont portés au même potentiel que celui de l'anode. L'isolant n'est pas dans le prolongement de la sphère cathodique et se retrouve donc en retrait, en arrière des supports d'anode et des tubes polaires.

Dans notre cas, nous n'avons pu avoir accès aux données exactes des caractéristiques géométriques de chacun des compteurs du ROSPEC ainsi que la composition des matériaux utilisés, le constructeur se refusant à les communiquer. Afin de palier à ce manque, nous avons repris les caractéristiques du compteur SP2 décrit par Benjamin *et al.* En effet, les paramètres géométriques des différents composants du compteur SP2 ont été optimisés en fonction du diamètre du compteur : diamètre de l'anode, position des tubes polaires, position, diamètre et épaisseur des supports de l'anode (figure 3.16).

Des études précédentes ont été réalisées sur des compteurs proportionnels sphériques de type SP, notamment par le PTB, conduisant à un code appelé SPHERE [102], et par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire [103]. Le code SPHERE prend en compte les deux effets majeurs conduisant à la distorsion de la fonction de réponse idéale, l'effet de paroi et l'inhomogénéité du champ électrique dans le compteur. Toutefois, le code SPHERE ne permet de calculer la fonction de réponse que pour des compteurs sphériques de rayon 2 cm. Il n'est donc pas adaptable directement pour des compteurs de rayon (ou diamètre) différent.

Nous nous sommes donc tournés vers la méthode des éléments finis, en définissant une géométrie correcte du compteur, pour résoudre l'équation de Laplace.

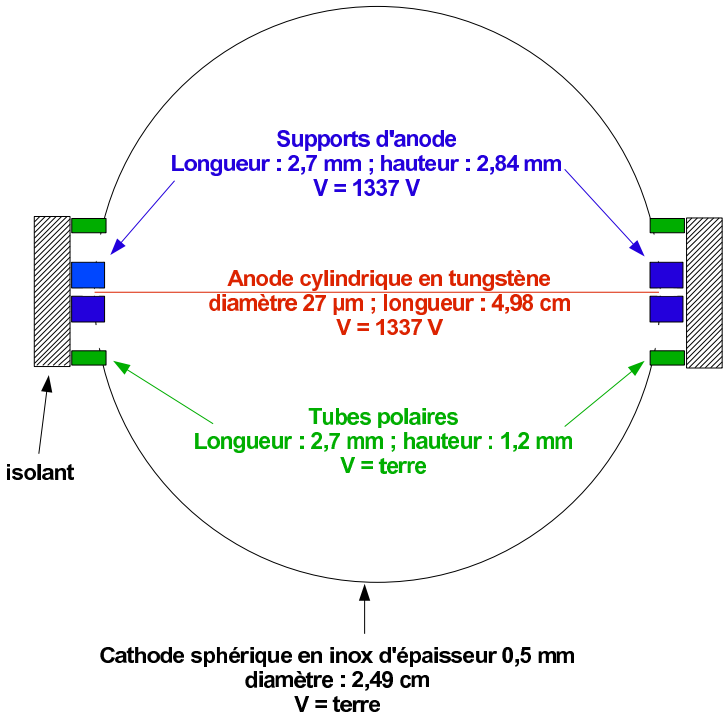

Supports d'anode
Longueur : 2,7 mm ; hauteur : 2,84 mm
V = 1337 V
Anode cylindrique en tungstène
diamètre 27 µm ; longueur : 4,98 cm
V = 1337 V
Tubes polaires
Longueur : 2,7 mm ; hauteur : 1,2 mm
V = terre
isolant
Cathode sphérique en inox d'épaisseur 0,5 mm
diamètre : 2,49 cm
V = terre

Fig. 3.16 – Coupe axiale du compteur SP2-1 utilisé pour la résolution numérique et caractéristiques géométriques

3.5.1 Méthode des éléments finis

Nous allons ici décrire de façon succinte la méthode des éléments finis, car il ne s'agit en aucun cas d'en traiter les aspects théoriques fondamentaux.

Des phénomènes physiques non linéaires très variés, tels que les phénomènes de transport, la thermodynamique, la mécanique des fluides, l'électromagnétisme..., sont décrits théoriquement par des équations aux dérivées partielles. Différentes méthodes numériques existent pour résoudre ces problèmes, comme la méthode des images, les schémas centrés en espace et avant en temps, la méthode des différences finies, la méthode des éléments finis...

Le principe de la méthode des éléments finis consiste dans une première étape à décomposer ou à découper le domaine spatial étudié en une réunion d'éléments de forme et de taille arbitraire. Ce pavage est communément appelé grille ou maillage. Les éléments d'un maillage permettent de construire les éléments finis. Pour cela, il est nécessaire de définir correctement les nœuds, les degrés de liberté, les schémas d'interpolation..., afin de pouvoir calculer ce qui est nécessaire (matrice de rigidité, second membre...) pour obtenir une solution au problème étudié.

Pour chaque élément, un certain nombre de points doivent être définis, pouvant être situés sur les côtés frontière de l'élément ou à l'intérieur de celui-ci. Ces points, que l'on appelle aussi nœuds de l'élément, vont servir ensuite à construire les approximations des fonctions étudiées sur tout le domaine, suivant la technique d'interpolation. Pour chaque fonction ou chaque inconnue du problème, il faut déterminer sa valeur en ces points.

De nombreux types d'éléments existent, mais les deux principaux généralement utilisés sont le triangle et le quadrangle, avec respectivement trois et quatre nœuds aux sommets de chaque élément. La qualité du maillage dépendra du nombre d'éléménts utilisés et donc du nombre de nœuds, ce qui conditionnera la dimension de la matrice à résoudre.

Comme dans toute résolution numérique, il est nécessaire de s'attacher aux conditions initiales du problème et à des conditions spécifiques telles que les *conditions aux limites*.

Notre étude est un problème classique en électromagnétisme, c'est à dire un problème stationnaire. Il n'y a donc pas d'évolution temporelle, avec un potentiel fixé à l'avance pour tous les éléments composant le compteur proportionnel.

En plus de ces conditions initiales, il est primordial de définir également des *conditions aux limites*, qui imposent des valeurs dans certaines régions de l'espace, en général aux frontières (ou limites) et aux interfaces d'un système. Deux grands types de conditions aux limites existent :

- *les conditions aux limites de Dirichlet* : celles-ci portent directement sur la ou les variables en fixant les valeurs de la solution aux frontières ;
- *les conditions aux limites de Neumann* : celles-ci s'appliquent sur les valeurs de la dérivée (ou gradient) de la grandeur sur la frontière.

La seconde catégorie (Neumann) permet notamment d'imposer des flux surfaciques dans un problème physique (flux de température, de pression, de concentration, de charges...). Dans notre cas, il ne sera pas nécessaire d'imposer de telles conditions. Seules des conditions aux limites de Dirichlet seront nécessaires, avec les valeurs du potentiel pour les

différents constituants du compteur proportionnel. Ainsi, la cathode et les tubes polaires sont placés à $V = 0$, l'anode et ses supports sont quant à eux placés à un potentiel de plusieurs milliers de volts.

Nous avons choisi d'utiliser un logiciel, COMSOL 3.3 [104], spécifiquement dédié à la résolution des équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis. Il permet de définir avec une très grande précision la géométrie souhaitée, ce qui correspond particulièrement bien à notre problème. Il permet de résoudre des problèmes stationnaires ou évolutifs dans un très large domaine d'applications (électromagnétisme, mécanique du solide, écoulements et mécanique des fluides...). Le choix du maillage est libre, plus ou moins raffiné avec la possibilité de l'améliorer pour certaines régions (figure 3.17). Les éléments utilisés sont des triangles, avec une méthode d'interpolation de type quadratique-lagrangienne.

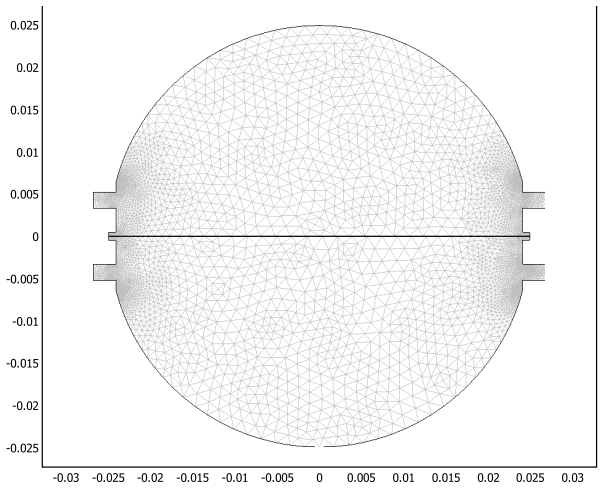


Fig. 3.17 – Maillage raffiné du compteur SP2 utilisé pour la résolution numérique

3.5.2 Résolution de l'équation de Laplace

Les applications incluant des appareils à haute tension, tels que les compteurs proportionnels, relèvent de l'électrostatique généralisée, qui est principalement reflètée par l'équation de Poisson :

$$-\nabla(\epsilon_0 \nabla V - P) = \rho \tag{3.44}$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide, V le potentiel électrique et P la polarisation électrique et ρ la densité de charges. Cette équation peut s'écrire de façon plus complète :

$$-\nabla\left[(\sigma + \epsilon_0\epsilon_r)\nabla V - J^e)\right] = \rho_0 \tag{3.45}$$

avec σ la conductivité électrique, ϵ_r la permittivité relative du milieu, J^e la densité de courant externe et ρ_0 la densité de charges d'espace. Dans notre cas précis, la conductivité électrique du milieu, assimilé à de l'air, est nulle, sa permittivité relative vaut 1, la densité de courant externe et la densité de charges d'espace sont toutes deux nulles. De fait, cela revient à résoudre l'équation de Laplace avec les conditions aux limites de Dirichlet, soit :

$$\Delta V = 0 \tag{3.46}$$

Nous sommes alors en mesure de représenter l'allure du potentiel électrique (figure 3.18) au sein du compteur proportionnel SP2-1. Ce potentiel va varier de 1337 V à l'anode pour arriver progressivement à une valeur nulle au fur et à mesure que l'on se rapproche de la cathode sphérique. On remarquera également l'influence des supports d'anode et des tubes polaires.

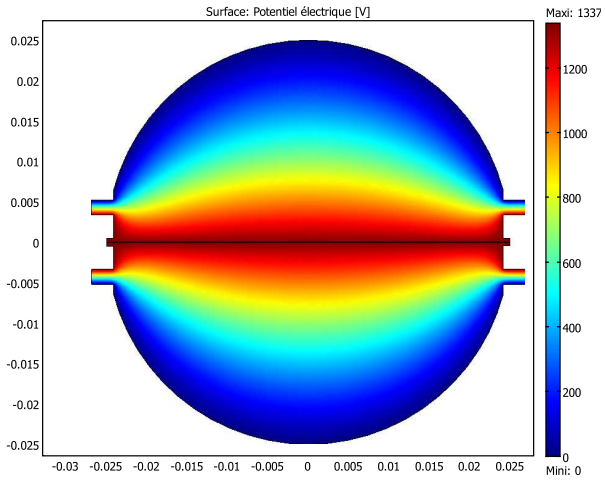


Fig. 3.18 – Potentiel électrique au sein du compteur SP2-1

Le tracé des lignes de champ en deux dimensions, selon x et y (figure 3.19), va nous servir pour définir les différentes régions dans le calcul Monte Carlo qui suivra. Il s'agit des lignes équipotentielles qui vont déterminer le cheminement des électrons jusqu'à l'anode et qui vont également définir le coefficient de multiplication gazeuse afférant à chacune des régions.

En grossissant la zone d'intérêt au voisinage des supports de l'anode (figure 3.20), nous remarquons que toutes les lignes de champ ne conduisent pas à l'anode : certaines

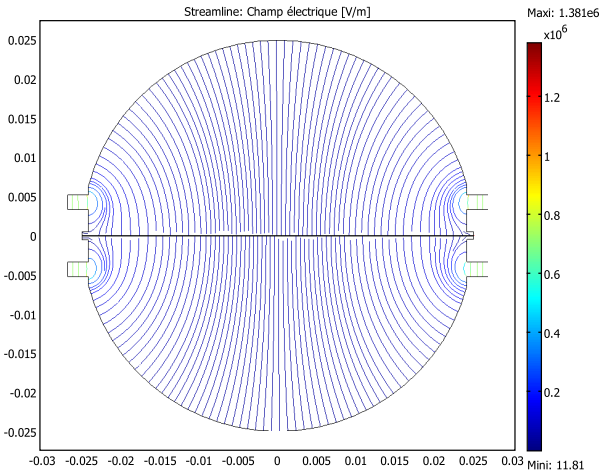


Fig. 3.19 – Lignes du champ électrique au sein du compteur SP2-1

lignes de champ vont des tubes polaires aux supports d'anode. Les électrons qui suivront ces lignes ne produiront donc pas d'impulsions sur l'anode. De fait, ces lignes de champ définissent une zone morte de détection à proximité des tubes polaires et des supports de l'anode. Ces résultats sont confirmés par l'étude du PTB qui a conduit à l'élaboration du code SPHERE [102].

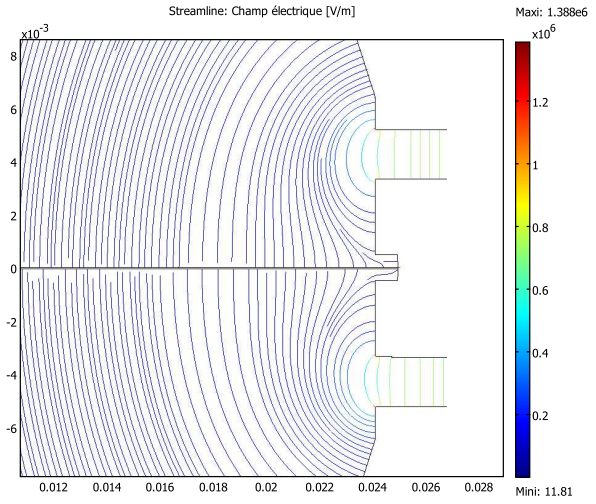


Fig. 3.20 – Lignes du champ électrique à proximité des supports d'anode au sein du compteur SP2-1

3.5.3 Coefficient de multiplication gazeuse et application à la simulation Monte Carlo

3.5.3.1 Amplification gazeuse

Suite aux calculs réalisés par la méthode des éléments finis, nous pouvons déterminer avec précision la variation du champ électrique le long de l'anode, pour chacun des compteurs de type SP2. Cette variation va conditionner le coefficient de multiplication gazeuse dans la région proche de l'anode et donc définir des régions de plus ou moins grande amplification gazeuse au sein de chaque compteur proportionnel.

Le nombre d'électrons $N(r)$ produit tout au long de l'avalanche est donné par la théorie de Townsend comme vu en 3.4.2.2 :

$$\begin{gathered} \frac{dN}{dr} = -\alpha(r)N \\ \text{avec } \alpha(r) = pA\exp(-pB/E(r)) \end{gathered} \tag{3.47}$$

où r est la distance jusqu'à l'anode, p la pression du gaz, A et B les paramètres phénoménologiques de Townsend pour le gaz considéré et $E(r)$ le champ électrique proche de l'anode, pour lequel l'approximation $E(r) = E_a R_a/r$ est suffisante (E_a est l'intensité du champ électrique sur l'anode et R_a le rayon de l'anode).

L'intégration de l'équation 3.47, où r varie de ∞ à R_a et $N(\infty) = 1$ conduit à :

$$N = \exp\left[\frac{AE_W R_a}{B}\exp\left(-\frac{pBr}{E_a R_a}\right)\right]_{r=\infty}^{r=R_a} \tag{3.48}$$

Le nombre final d'électrons $N(R_a)$ de l'avalanche, appelé **amplification du gaz**, vaut :

$$N = \exp\left[\frac{AE_a R_a}{B}\exp\left(-\frac{pB}{E_a}\right)\right] \tag{3.49}$$

D'après Nasser [40], la valeur de A pour H_2 est de 5,1 ionisations/cm/torr, ce qui correspond à 0,00383 ionisations/mm/Pa. Quant à la constante B, sa valeur est 138,8 V/cm/torr, soit 0,1043 V/mm/Pa.

Le compteur SP2-1 servira d'illustration précise quant à la méthodologie choisie. La figure 3.21 montre la variation du champ électrique E le long de l'anode, du centre du

compteur à une de ses extrémités : le champ électrique part de sa valeur centrale, puis s'accroit régulièrement jusqu'à un maximum situé à 19,6 mm. Au delà, le champ électrique décroit pour atteindre une valeur nulle. En effet, le potentiel de l'anode reste le même sur toute sa longueur (1337 V pour SP2-1), mais la distance anode-cathode diminue contribuant à l'augmentation de E. En se rapporochant des extrémités du compteur, ce sont les supports d'anode et les tubes polaires qui vont contribuer à la chute de sa valeur.

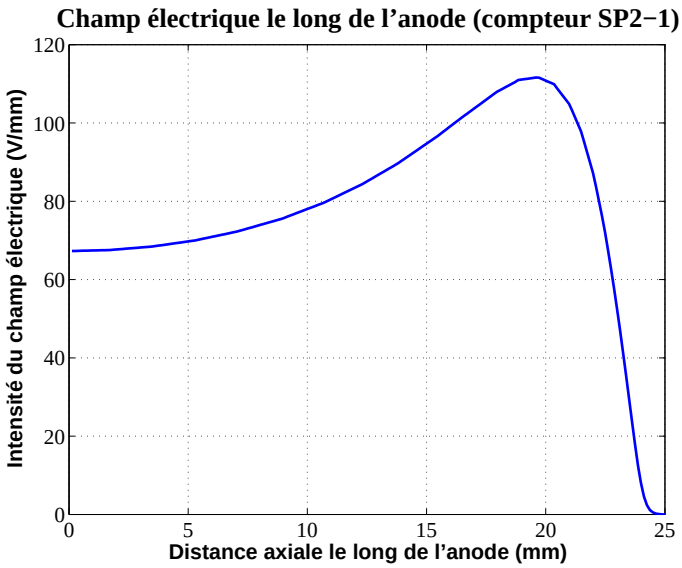


Fig. 3.21 – Allure du champ électrique le long de l'anode du compteur SP2-1

De fait, la variation du champ électrique E le long de l'anode va entraîner une variation du coefficient d'amplification gazeuse d'après l'équation 3.49. Cette variation est représentée figure 3.22, où le coefficient est normalisé par rapport à la valeur centrale, et peut atteindre environ $\pm 2\%$ de cette valeur centrale.

Les résultats de simulation issus de la littérature ne montrent pas une aussi fine variation (figure 3.23a) : l'amplification gazeuse reste stable dans la plus grande partie du compteur puis décroit à proximité de l'extrémité de l'anode.

Si nous comparons nos résultats à ceux issus cette fois-ci de la mesure des impulsions électriques le long de l'anode (figure 3.23b), nous constatons que l'allure est identique : la hauteur des impulsions augmente légèrement jusqu'à une certaine valeur, puis décroît au-delà. Notons toutefois que cette comparaison est d'ordre qualitatif, car les compteurs n'ont pas les mêmes dimensions, mais seulement les mêmes proportions (diamètre de l'anode, dispositions et diamètres des tubes polaires et des supports d'anode par rapport au diamètre de la cathode sphérique).

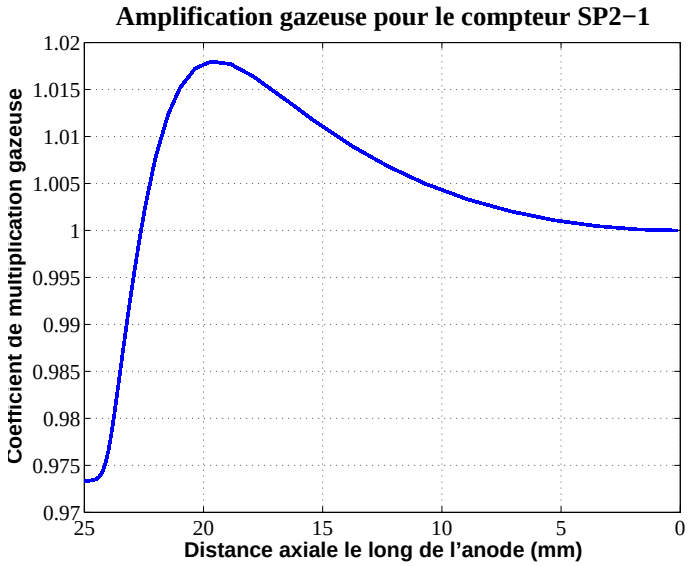


Fig. 3.22 – Allure du coefficient d'amplification gazeuse normalisé le long de l'anode du compteur SP2-1

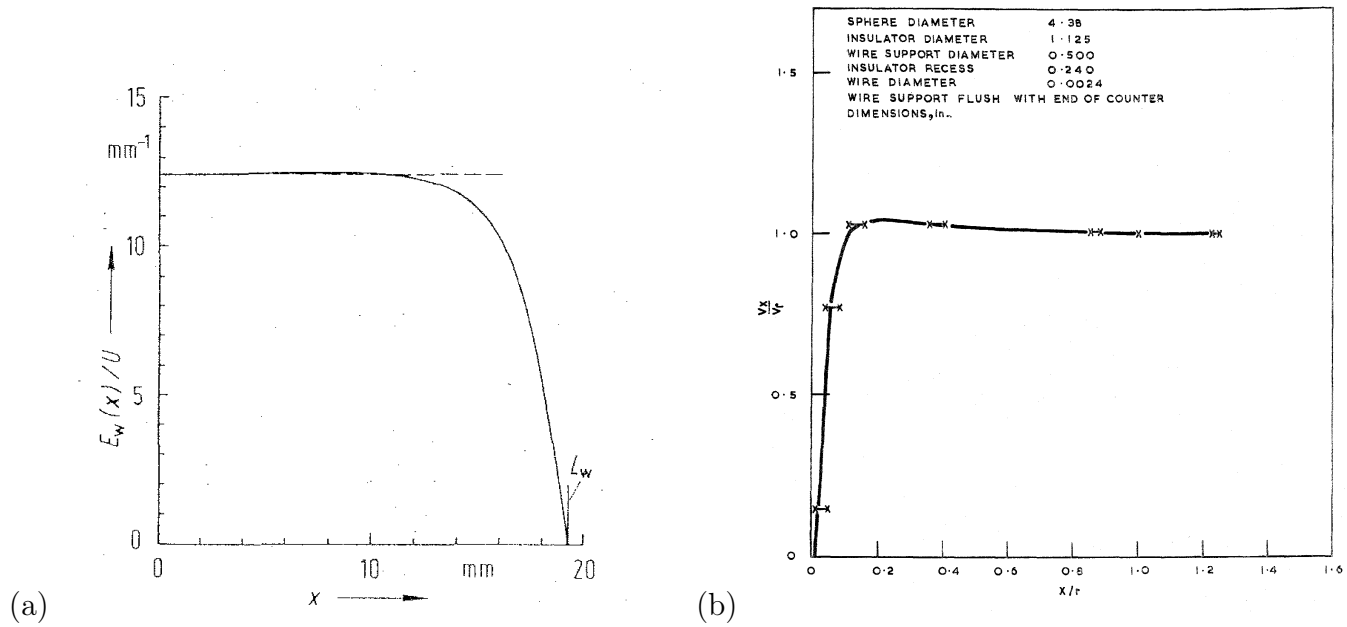


Fig. 3.23 – (a) Intensité du champ électrique calculée le long de l'anode par le PTB. (b) Variation des hauteurs d'impulsion le long de l'anode du compteur test par Benjamin *et al.*

C'est à partir des valeurs de l'amplification gazeuse et de leur position axiale que nous allons construire les différentes zones au sein du compteur proportionnel (figure 3.24). Rappelons que cette figure représente la moitié du compteur proportionnel. La seconde moitié s'obtient par symétrie équatoriale. Chaque zone a un coefficient d'amplification

gazeuse propre, calculé en moyennant toutes les valeurs de $N(R_a)$ entre x_i et x_{i+1} le long de l'anode. Les différentes zones sont ainsi définies (les longueurs sont données en mm) :

- La première zone correspond à la zone centrale du compteur, avec $-7,92 < x_1 < 7,92$, de volume 40,0120 cm^3 et de coefficient d'amplification gazeuse 1,001 ;
- les zones 2 ($7,92 < x_2 < 12,94$) et 2' ($-12,94 < x'_2 < -7,92$), situées de part et d'autre de la zone 1, de volume 7,9487 cm^3 et de coefficient 1,005 ;
- les zones 3 ($12,94 < x_3 < 15,95$) et 3' ($-15,95 < x'_3 < -12,94$), de volume 2,3382 cm^3 et de coefficient 1,01 ;
- les zones 4 ($15,95 < x_4 < 21,36$) et 4' ($-21,36 < x'_4 < -15,95$), de volume 1,7429 cm^3 et de coefficient 1,016 ;
- les zones 5 ($21,36 < x_5 < 23,11$) et 5' ($-23.11 < x'_5 < -21,36$), de volume 0,2044 cm^3 et de coefficient 1,004 ;
- les zones 6 ($23,11 < x_6 < 25,00$) et 6' ($-25,00 < x'_6 < -23,11$), de volume 0,0376 cm^3 et de coefficient 0,98.

Un plus grand nombre de zones aurait pû être choisi, mais cette option conduirait à de très petits volumes nécessitant un très grand nombre d'histoires lors de la simulation Monte Carlo pour avoir une statistique suffisante. De plus, un zonage encore plus complexe que celui réalisé conduira inévitablement à des temps de calcul encore plus longs, car cela multiplie le nombre de surfaces et complexifie le suivi des particules.

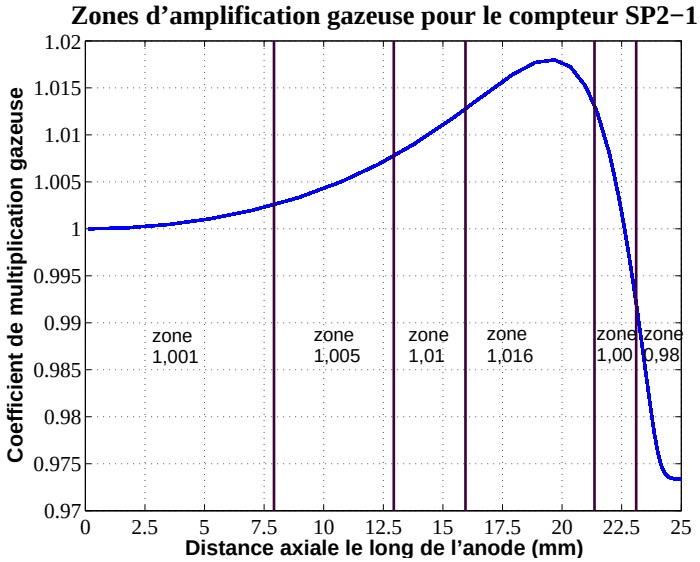


Fig. 3.24 – Zones d'amplification gazeuse variable pour le compteur SP2-1

3.5.3.2 Simulation MCNPX

Ainsi, le découpage choisi comprendra un volume central, le plus grand, et cinq volumes représentés par des couronnes sphériques ou des tores de part et d'autre de la position centrale représentée par le milieu de l'anode (figure 3.25). Nous avons attribué à ces différentes zones de fausses couleurs en fonction de l'amplification gazeuse. La simulation Monte Carlo avec MCNPX s'effectuera de la sorte :

1. le dépôt d'énergie des protons de recul est calculé (comptage de type `f6:h`) dans chaque zone et pondéré par le coefficient d'amplification gazeuse correspondant (`fm6`) ;
2. ce dépôt d'énergie corrigé est utilisé pour déterminer le comptage des impulsions dues aux protons (`ft8 phl 1 6 1 0`, puis `f8:h`) dans chaque zone ;
3. le calcul final correspond à la somme des comptages des impulsions protons de toutes les zones, soit 11 au total.

La principale difficulté de cette simulation est d'avoir une statistique suffisante dans de petits volumes, notamment ceux des zones proches des tubes polaires et des supports d'anode. Deux milliards d'histoires par énergie nominale de neutrons ont été nécessaires pour avoir des résultats significatifs et de faibles erreurs relatives.

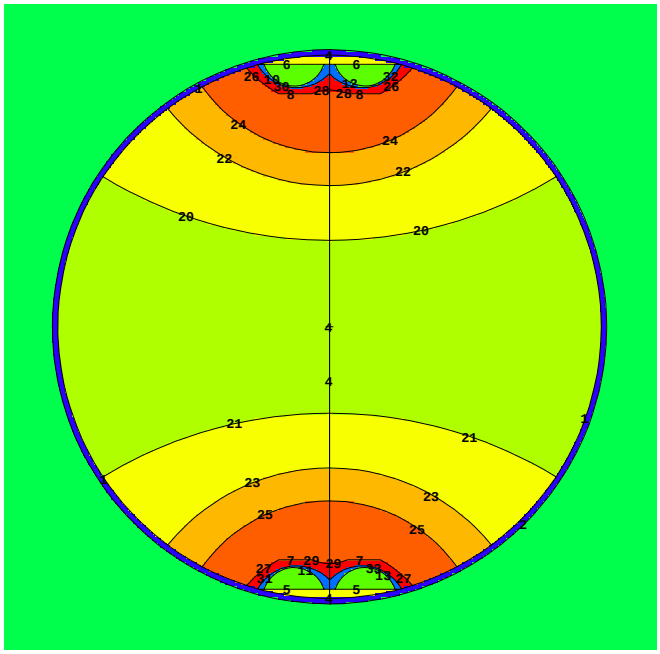


Fig. 3.25 – Reproduction géométrique des zones avec un dépôt d'énergie variable dans MCNPX.

3.6 Résultats

Nous allons comparer pour chaque compteur SP2 les résultats issus de mesures devant des faisceaux ISO de neutrons monocinétiques, mesures réalisées au PTB (Braunschweig, Allemagne) et gracieusement fournies par l'équipe de Tom Mc Lean du Los Alamos National Laboratory, les résultats issus de MCNPX et ne traduisant que l'effet de paroi et les résultats issus de MCNPX tenant compte de l'effet de champ électrique. Les caractéristiques suivantes pour chacun des compteurs SP2 utilisées pour les simulations sont résumées dans le tableau ci-après (3.2) :

	SP2-1		SP2-4		SP2-10	
Potentiel (V)	1337		2581		4140	
Énergie des neutrons (keV)	146 ±24	250 ±20	250 ±20	565 ±19	565 ±19	1200 ±91
ROI	62-206	62-243	57-200	57-200	63-208	63-208
Énergie des canaux (keV)	44,6-226	44,6-272,7	164,8-749,7	164,8-749,7	378,3-1552,8	378,3-1552,8

TAB. 3.2 – Caractéristiques des compteurs SP2 utilisées dans MCNPX

L'incertitude sur l'énergie des neutrons incidents est prise en compte lors des simulations à travers un élargissement gaussien de la source.

3.6.1 Compteur SP2-1

Deux énergies expérimentales de neutrons monocinétiques, 146 keV et 250 keV, sont disponibles pour ce compteur. La figure 3.26a compare le spectre des protons de recul issu des mesures à 146 keV (en bleu), le spectre des protons de recul issu des simulations MCNPX ne prenant en compte que l'effet de paroi (en rouge) et celui issu des simulations MCNPX avec les effets de champ (en noir).

Dans la partie basse des canaux du compteur, la simulation MCNPX avec les effets de champ est en bon accord avec le spectre expérimental, mais s'en écarte quelque peu pour les canaux des énergies supérieures.

La figure 3.26b illustre les comparaisons pour un faisceau incident de neutrons avec

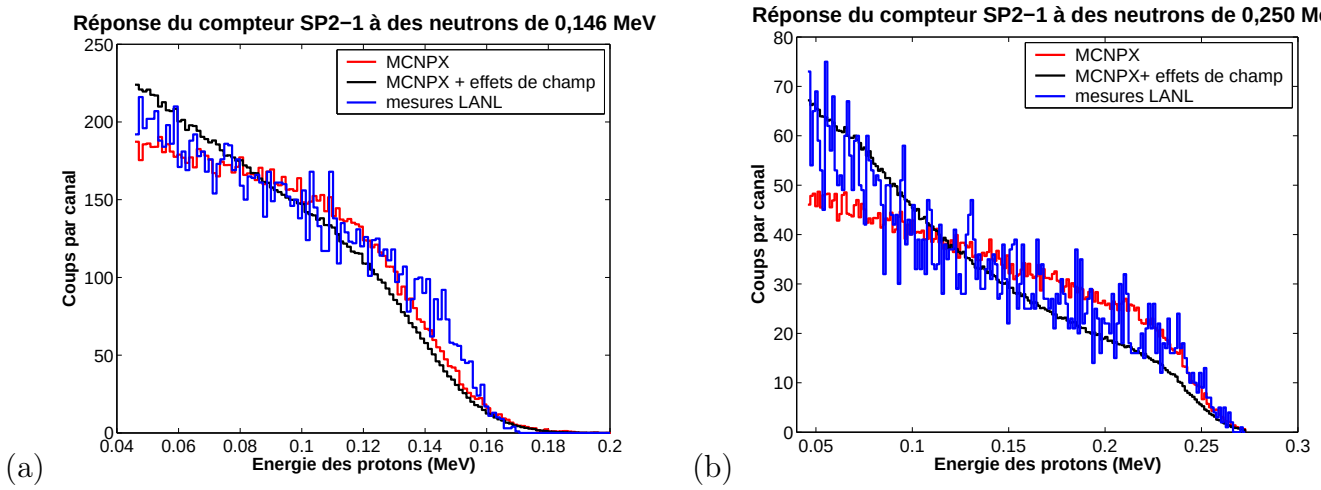


Fig. 3.26 – Réponses expérimentale et simulées du compteur SP2-1 à des neutrons de 0,146 MeV (a) et de 0,250 MeV (b)

une énergie de 250 keV. Le spectre simulé avec les effets de champ est en très bon accord avec les mesures hormis sur les canaux de haute énergie, tandis que le spectre "effet de paroi" en est sensiblement éloigné, notamment sur les canaux de basse énergie.

Les calculs avec les effets de champ ont pour principale conséquence de modifier la pente de la réponse du compteur étudié, qui devient plus importante que celle liée exclusivement à l'effet de paroi. Cependant, l'écart entre les deux types de simulation est moindre pour les neutrons de 146 keV que pour ceux à 250 keV : cet écart est fonction des parcours des protons de recul, qui sont croissants avec l'énergie des neutrons incidents. Le principal effet de la correction liée au champ électrique est de dénombrer plus de protons avec une faible énergie (augmentation du nombre de coups dans les canaux de basse énergie) et de réduire le nombre de protons avec une énergie proche de celle des neutrons incidents.

3.6.2 Compteur SP2-4

Dans le cas du compteur SP2-4, la valeur du potentiel appliqué le long de l'anode est presque deux fois plus élevée que précédemment, soit 2581 V. La correction due à l'inhomogénéité du champ électrique sera de fait plus importante, comme nous pouvons le voir figure 3.27, variant de +3,5% à -5% par rapport à la valeur centrale.

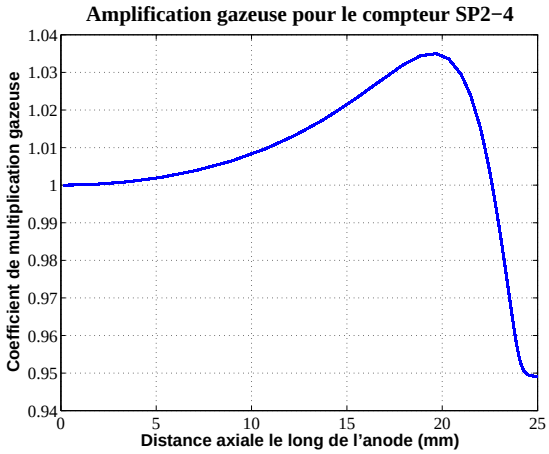

Amplification gazeuse pour le compteur SP2−4
Coefficient de multiplication gazeuse
Distance axiale le long de l'anode (mm)

FIG. 3.27 – Allure du coefficient d'amplification gazeuse normalisé le long de l'anode du compteur SP2-4

Deux énergies expérimentales, servant de base pour une comparaison, sont également disponibles pour le compteur SP2-4 : 250 keV et 565 keV. Dans le premier cas (fig 3.28a), la correction de champ ne semble pas très importante, mais se rapproche légérement des mesures par rapport à l'effet de paroi seul. Dans le second cas à 565 keV (figure 3.28b), la contribution du champ électrique semble primordiale et concorde parfaitement avec le spectre des protons de recul mesuré.

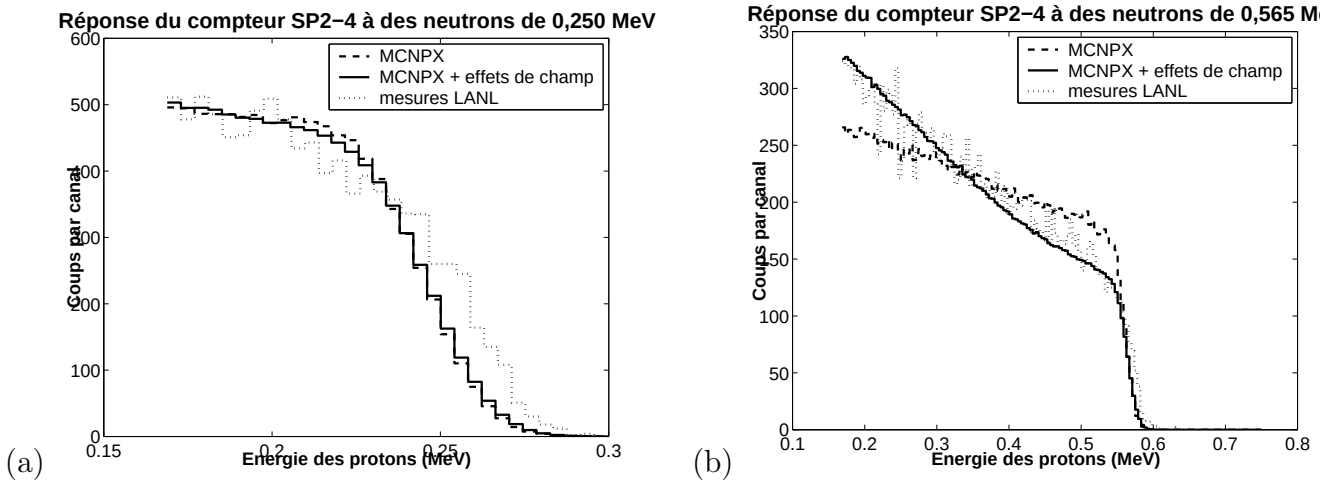


FIG. 3.28 – Réponses expérimentales et simulées du compteur SP2-4 à des neutrons de 0,250 MeV (a) et de 0,565 MeV (b)

3.6.3 Compteur SP2-10

Pour ce compteur, la valeur du potentiel appliqué le long de l'anode est 4140 V, conduisant à une allure de l'amplification gazeuse similaire aux deux compteurs précédents, mais avec une plage de variation différente, s'étendant d'environ +6% à -8% par rapport à la valeur centrale.

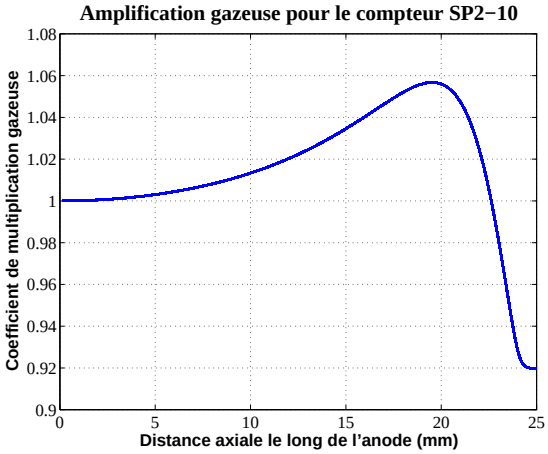


Fig. 3.29 – Allure du coefficient d'amplification gazeuse normalisé le long de l'anode du compteur SP2-10

Les conclusions restent identiques : la correction d'amplification gazeuse est plus faible pour les petits parcours de protons à 565 keV (3.30a), tandis qu'elle est plus importante pour des parcours de protons plus élevés (3.30b). Notons l'excellent accord entre les mesures et les valeurs simulées dans le second cas.

Il aurait été nécessaire de réaliser un travail équivalent pour le compteur SP6. Nous n'avons pas été en mesure de le faire faute de temps : la simulation numérique de ce compteur nécessite des temps de calculs encore plus importants. Néanmoins, ce travail sera réalisé dans la suite de cette étude.

3.6.4 Bilan de la prise en compte des effets de champ électrique

Au regard des résultats exposés, nous sommes en mesure d'affirmer qu'une méthode fiable, rigoureuse et efficace a été développée. Les principales conclusions pour les trois compteurs SP2 sont les suivantes :

– le calcul par la méthode d'éléments finis du coefficient de multiplication gazeuse le

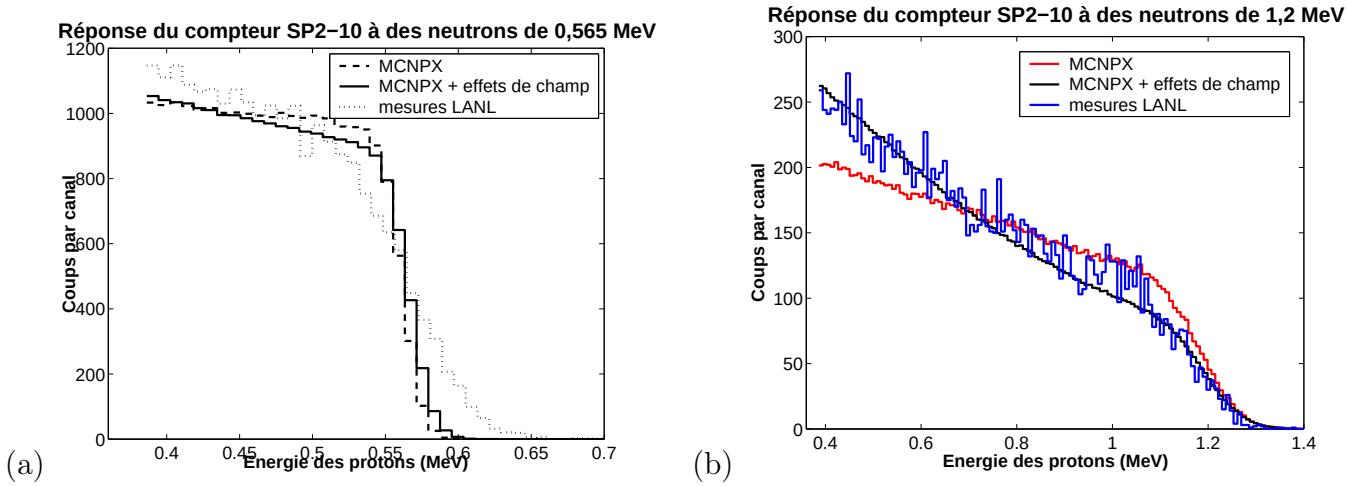


FIG. 3.30 – Réponses expérimentales et simulées du compteur SP2-10 à des neutrons de 0,565 MeV (a) et de 1,20 MeV (b)

long de l'anode nous ont permis de constater qu'il varie de façon assez complexe,
- la correction incluant les effets de champ électrique est d'autant meilleure que l'énergie des neutrons incidents est élevée,
- la correction de l'effet de paroi est quasi-linéaire dans la partie basse et intermédiaire des canaux de chaque compteur SP2, puis décroît brutalement.
- la correction d'amplification gazeuse augmente le nombre de protons de faible énergie et diminue le nombre de protons d'énergie élevée dans tous les cas. De plus, elle traduit un épaulement aux énergies élevées (250 keV pour SP2-1, 565 keV pour SP2-4 et 1200 keV pour SP2-10) situé juste avant l'énergie nominale des neutrons.
- cette correction semblerait être moins adaptée au regard d'énergie en dehors du domaine de détection du compteur (figure 3.31), où elle serait trop importante et l'effet de paroi largement prédominant. Il faudrait certainement en tenir compte lors de la construction des matrices de réponse au delà du domaine de détection du compteur.

Plusieurs paramètres clés permettent de mieux comprendre les phénomènes observés :

- l'efficacité de détection des compteurs est une fonction croissante de la pression du gaz. Sur un même faisceau de neutrons, nous observons une statistique de comptage acceptable pour le compteur ayant la pression gazeuse la plus élevée : par exemple SP2-4 à 250 keV (figure 3.28a) présente plus de coups par canal que SP2-1 à la même énergie (figure 3.26b). Il en est de même pour SP2-10 (figure 3.30a) et SP2-4 (figure 3.28b) à 565 keV.
- Le dépôt d'énergie des protons et sa modification à travers la multiplication gazeuse :

le transfert d'énergie linéique des protons n'est pas homogène tout au long de leur trajectoire (courbe de Bragg). De plus, deux protons d'énergie équivalente mais générés à deux endroits différents ne traverseront pas les mêmes zones d'amplification gazeuse variable. Les impulsions produites pourront donc être différentes.

– L'effet de paroi, qui est plus important pour les protons ayant de grands parcours, c'est-à-dire pour les énergies de neutrons les plus importantes.

– Les domaines par défaut pour les compteurs SP2 sont essentiellement définis au vu de l'efficacité de détection. Or nous avons pu voir que pour les énergies d'irradiation communes (250 keV et 565 keV), ce sont les compteurs de plus basses pressions qui restituent le mieux l'énergie incidente (présence de l'épaulement) et où les corrections sont les plus pertinentes.

À travers ces différents paramètres, nous voyons donc toute la complexité du phénomène de détection avec la statistique de comptage, les fonctions de réponse et les corrections à apporter.

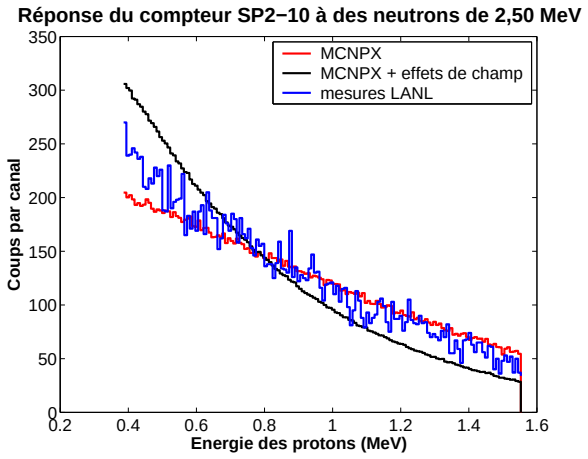


Fig. 3.31 – Réponses expérimentales et simulées du compteur SP2-10 à des neutrons de 2,50 MeV

Cette correction tenant compte de l'amplification gazeuse variable est donc nécessaire pour la construction de la matrice de réponse de chaque compteur. Celle-ci devra ainsi être calculée pour toutes les énergies de neutrons monocinétiques du domaine de détection, avec un pas approprié. Cette construction est primordiale dans la perspective d'une meilleure résolution de l'appareil ROSPEC et du processus de déconvolution qui y est nécessairement associé.

Chapitre 4

Amélioration de la déconvolution spectrométrique du ROSPEC

4.1 Généralités sur la déconvolution

4.1.1 Définition

Les détecteurs soumis à un champ de rayonnements donnent un certain nombre d'informations brutes qu'il est nécessaire de traiter pour déduire le spectre de particules incidentes. Ce traitement est appelé déconvolution et est plus ou moins complexe selon le système de détection utilisé. De façon générale, la déconvolution est la résolution des "problèmes inverses". La déconvolution est nécessaire dans le cas de mesures faites au moyen de systèmes multi-canaux.

4.1.1.1 Les champs mixtes (n,γ)

Les détecteurs utilisés pour la spectrométrie dans les champs mixtes neutrons-gamma indiquent en général une superposition de données du fait que le champ a deux composantes de rayonnement. Dans le cas de détecteurs à réponse isotropique, la donnée affichée z_i du numéro i d'un ensemble de M détecteurs ou la donnée affichée z_i d'un canal i d'un

détecteur multi-canaux peut être écrite comme suit :

$$z_i = \int dE_\gamma R_i^\gamma(E_\gamma)\Phi_E^\gamma(E_\gamma) + \int dE_n R_i^n(E_n)\Phi_E^n(E_n) \tag{4.1}$$

où $R_i^\gamma(E_\gamma)$ et $R_i^n(E_n)$ sont les fonctions de réponse du détecteur i pour les rayonnements gamma et neutron respectivement aux énergies de photon E_γ et de neutron E_n. Pour les détecteurs sphériques, les réponses sont isotropiques, ce qui signifie que leurs fonctions de réponse ne dépendent pas de la direction des particules incidentes.

4.1.1.2 Déconvolution et problèmes inverses

Nous allons considérer la déconvolution dans la spectrométrie neutron puisque nous supposons que les photons γ influent peu sur les mesures des compteurs proportionnels du ROSPEC, les domaines énergétiques de protons de recul détectés correspondants étant réduits pour soustraire la perturbation γ (voir chapitre 3). La relation 4.1 peut s'écrire plus simplement :

$$z_i = \int dE R_i(E)\Phi_E(E) \tag{4.2}$$

La fonction de réponse $R_i(E)$, telle qu'elle apparaît dans l'équation 4.2, a les propriétés de fonction de transfert. Numériquement, l'équation 4.2 doit être transformée en l'équation matricielle discétisée comme suit :

$$\mathbf{z} = \mathbf{R\Phi} \tag{4.3}$$

avec le vecteur de groupes de fluence $\mathbf{\Phi^T} = (\mathbf{\Phi_1} \dots \mathbf{\Phi}_\nu \dots \mathbf{\Phi_N})$ où Φ^T est la transposée de la matrice Φ. L'objectif de la déconvolution est de trouver le vecteur fluence en résolvant l'équation 4.3 en connaissant les données mesurés ($\mathbf{z}$) et les fonctions de réponses du ou des compteur(s) utilisé(s) pour les mesures spectrales.

Ainsi l'évaluation du vecteur fluence spectrale des neutrons Φ d'après l'équation 4.3 est appelée "résolution du problème inverse de la spectrométrie" ou déconvolution.

4.1.1.3 Formulation générale et prise en compte de l'incertitude

Le spectre de neutrons inconnu n'est pas déduit directement des données mesurées. L'expression 4.3 est en fait une représentation idéalisée du problème car elle ne tient pas compte de l'existence des incertitudes attachées à toute mesure expérimentale qu'elles soient systématiques ou statistiques.

La relation entre le spectre recherché et les quantités mesurées peut donc être exprimée de façon plus générale comme suit :

$$z_i = \int_0^\infty R_i(E)\Phi(E)dE + \varepsilon_i \tag{4.4}$$

où z_i est la i$^{\text{ème}}$ réponse mesurée, ce qui correspond, pour les compteurs proportionnels gazeux étudiés, au nombre de protons de recul dans un canal d'énergie ; R_i est la fonction de réponse du détecteur ; $\phi(E)$ est la fluence dépendante de l'énergie E ; ε_i est une quantité donnant une erreur inconnue réflétant les incertitudes des réponses mesurées et des données de sections efficaces [105].

Mathématiquement, le problème est un cas dégénéré de l'équation intégrale de Fredholm du premier type [106]. Il n'a pas de solution unique car un nombre fini de mesures discrètes ne permet pas de définir une fonction continue. Pour trouver une solution physique cohérente, une information *a priori* doit être implémentée dans la méthode de déconvolution. Cette information peut donner la forme supposée du spectre, son degré de "lissage" ou le fait qu'il soit toujours positif. Nous reviendrons ultérieurement sur cette notion très importante dans le traitement de notre problématique.

La forme discrétisée de la relation 4.4 est :

$$z_i = \sum_{j=1}^{n} R_{ij}\Phi_j + \varepsilon_i,\ i = 1\ \ldots m \tag{4.5}$$

ou sous la forme matricielle :

$$\mathbf{z} = \mathbf{R}\mathbf{\Phi} + \varepsilon \tag{4.6}$$

où $\mathbf{R}$ est la matrice de réponse discrétisée et $\mathbf{\Phi}$ est le vecteur des valeurs de fluence inconnues, que ce soient des valeurs ponctuelles ou des groupes de fluence.

Pour les détecteurs multi-sphères et les détecteurs à activation, le nombre d'équations m est usuellement inférieur à 20 et le nombre d'inconnues n est typiquement beaucoup plus important, allant de 25 à quelques centaines. L'équation est alors dite "indéfinie". Dans ce cas, il s'agit d'un problème de déconvolution dit à "faible nombre de canaux". Avec les méthodes utilisant les protons de recul, comme c'est le cas pour le ROSPEC, le nombre d'équations est égal ou supérieur au nombre d'inconnues, soit environ une centaine. Par conséquent, l'équation 4.6 est sur-déterminée, c'est-à-dire que des variations minimes dans les données mesurées peuvent causer d'importants changements dans la solution selon la forme des fonctions de réponse. Nous avons alors affaire à un problème de déconvolution dit "multi-canaux".

4.1.2 Méthodes mathématiques utilisées pour les problèmes de déconvolution

4.1.2.1 Théorème de Bayes

Bayes est le premier à proposer une procédure cohérente de déconvolution qui permet l'introduction d'informations *a priori* et d'informations de mesures combinées [107] [108]. Il a suggéré qu'une procédure qui recherche le maximum de la probabilié *a posteriori* doit être accomplie pour estimer les paramètres de déconvolution. Ce concept se base sur deux principes essentiels édictés par Bayes et Laplace [108] :

1) la probabilité *a posteriori* est proportionnelle à la probabilité *a priori* multipliée par l'éventualité,
2) Si aucune information *a priori* sur les paramètres est connue, une densité de probabilité uniforme des paramètres doit être supposée.

Étant donné que la méthode peut être appliquée à plusieurs types de problèmes physiques, donnons-en une description générale. Il est à noter que l'application de cette méthode se situe dans le cadre de la spectrométrie neutronique, où les "paramètres" à déterminer sont les valeurs de fluences spectrales des neutrons, et où les mesures sont en fait le nombre de "coups" dus aux protons de recul dans les compteurs proportionnels gazeux.

La construction de la probabilité *a posteriori* (le spectre neutronique final) nécessite, selon Bayes, l'hypothèse d'une probabilité *a priori* et d'une "éventualité" (*likelihood*). Des données observées $A = (A_1, \ldots, A_N)^T$ tirées aléatoirement à partir d'une densité de probabilité étant enregistrées, le but est d'évaluer les paramètres $\phi = (\phi_1, \ldots, \phi_M)$, pour lesquelles un modèle $A_i = f_i(\phi)$ $(i = 1, \ldots, N)$ est valide. S'il n'y a pas d'informations *a priori* disponibles sur les paramètres ϕ, le deuxième principe de Bayes et Laplace est utilisé et pour chaque paramètre ϕ_ν, un intervalle $[\phi_{\nu,\ min}, \phi_{\nu,\ max}]$ est spécifié ; il contient toujours ϕ_ν. Cependant, toutes les valeurs de ϕ_ν sont équiprobables. Si une information *a priori* est disponible, il est possible de réduire l'intervalle et d'assigner une densité de probabilité plus détaillée au vecteur du paramètre ϕ. Il pourrait exister, par exemple, un calcul ou une estimation de $\hat{\mathbf{\Phi}}$ faite auparavant, avec la matrice de covariance associée $\mathbf{K_\Phi}$, de telle façon qu'il peut être supposé une distribution de densité normale multivariante pour les valeurs négatives de ϕ_ν selon Perey [109] et Dragt [110] :

$$P_0(\mathbf{\Phi}) = C \exp\big(-\frac{1}{2}(\mathbf{\Phi} - \hat{\mathbf{\Phi}})^T \mathbf{K_\Phi^{-1}} (\mathbf{\Phi} - \hat{\mathbf{\Phi}})\big) \tag{4.7}$$

où C est une constante de normalisation.

L'étape suivante permet l'obtention de la quantité "éventualité". En considérant les données observées A_i aléatoires avec une espérance $f_i(\mathbf{\Phi})$ avec $\mathbf{\Phi}$ fixe, la densité de probabilité des A_i doit être prise pour la fonction "éventualité". Il n'y pas de restriction sur la forme de cette distribution. Dans la plupart des cas, une densité de probabilité normale multivariante est supposée pour la fonction "éventualité" :

$$P_L(\mathbf{A} \mid \mathbf{\Phi}) = C' \exp\big(-\frac{1}{2}(\mathbf{A}-\mathbf{f})^T \mathbf{K_A^{-1}} (\mathbf{A}-\mathbf{f})\big) \tag{4.8}$$

où C' est une autre constante de normalisation. Ici $\mathbf{K_A}$ est la constante de covariance empirique. Après ces considérations *a priori*, la densité de probabilité *a posteriori* pour le vecteur paramètre (le vecteur fluence neutronique pour notre problématique) est déduite selon le théorème de Bayes [107] [108] :

$$P(\mathbf{\Phi} \mid \mathbf{A}) = C'' P_L(\mathbf{A} \mid \mathbf{\Phi}) P_0(\mathbf{\Phi}) \tag{4.9}$$

avec la constante de normalisation $C'' = 1/P(\mathbf{A})$, où $P(\mathbf{A})$ est un nombre pur. L'équation 4.9 constitue la relation fondamentale de Bayes [108]. Elle permet l'évaluation du vecteur paramètre qui maximise $P(\mathbf{\Phi} \mid \mathbf{A})$. Cette quantité est appelée estimateur de Bayes [107] du vecteur paramètre. Étant donné que l'ensemble de la densité de probabilité du vecteur paramètre $\mathbf{\Phi}$ est accessible, non seulement il est possible d'évaluer sa valeur la plus probable mais il est également possible d'estimer la valeur de l'espérance mathématique de ce vecteur paramètre. De plus, les espérances mathématiques et les écarts-types des fonctions du paramètre vecteur peuvent être évalués.

4.1.2.2 Méthode des moindres carrés

Dans la suite, nous allons supposer que la quantité mesurée $\mathbf{z_0}$ et la matrice d'incertitude $\mathbf{S_{z_0}}$ (appelée également matrice de covariance) du vecteur $\mathbf{z_0}$ sont connues et que la valeur attendue de la quantité fluctuante ε est égale à zéro. M est le nombre de canaux du détecteur (découpage énergétique pour les protons de recul dans le cas de nos compteurs proportionnels), N est le nombre de groupes d'énergie pour la fluence neutronique. Dans le cas "sur-déterminé" ($M \geq N$), le spectre solution et sa matrice d'incertitude correspondante sont souvent calculés en utilisant la méthode des moindres carrés [111] [112] [113], où la quantité :

$$\chi^2 = (\mathbf{z_0} - \mathbf{R} \cdot \mathbf{\Phi})^{\mathbf{T}} \cdot (\mathbf{z_0} - \mathbf{R} \cdot \mathbf{\Phi}) \tag{4.10}$$

est minimisée, à condition que $\mathbf{S_{z_0}}$ ne soit pas singulière. La solution de l'équation 4.10 est obtenue à partir des équations appelées "équations normales" :

$$\mathbf{R^T} \cdot \mathbf{S_{z_0}^{-1}} \cdot \mathbf{z_0} = \mathbf{R^T} \cdot \mathbf{S_{z_0}^{-1}} \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{\Phi} = \mathbf{B} \cdot \mathbf{\Phi} \tag{4.11}$$

qui doivent être résolues pour $\mathbf{\Phi}$. L'équation 4.11 a une solution unique si la matrice $\mathbf{B}$ a un rang égal au nombre de groupes de fluence neutronique N. La matrice $\mathbf{B}$ est souvent appelée matrice de structure [114].

Nous supposons qu'une information *a priori* $\mathbf{R_0}$ sur la matrice de réponse est disponible (ou que quelques paramètres $\mathbf{p_0}$ de la matrice de réponse sont connus auparavant) avec la matrice d'incertitude $\mathbf{S_{R_0}}$ ou $\mathbf{S_{p_0}}$. Si, de plus, la fluence neutronique $\mathbf{\Phi_0}$ a été calculée ou déterminée par une mesure indépendante avec la matrice d'incertitude correspondante $\mathbf{S_{\Phi_0}}$, l'expression générale de χ^2 :

$$\chi^2 = (\mathbf{z_0} - \mathbf{z})^{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{S_{z_0}^{-1}} \cdot (\mathbf{z_0} - \mathbf{z}) + (\mathbf{R_0} - \mathbf{R})^{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{S_{R_0}^{-1}} \cdot (\mathbf{R_0} - \mathbf{R}) + (\mathbf{\Phi_0} - \mathbf{\Phi})^{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{S_{\Phi_0}^{-1}} \cdot (\mathbf{\Phi_0} - \mathbf{\Phi}) \tag{4.12}$$

doit être minimisée avec la contrainte $\mathbf{z} = \mathbf{R}(\mathbf{p}) \cdot \mathbf{\Phi}$ par rapport à $\mathbf{z}$, $\mathbf{R}$ (ou $\mathbf{p}$) et $\mathbf{\Phi}$. L'équation 4.12 est l'expression de χ^2 pour une procédure d'ajustement, où les paramètres ou la fluence sont déjà connus jusqu'à un certain point et la nouvelle mesure $\mathbf{z_0}$ est utilisée uniquement à des fins d'ajustement. Cette équation peut être considérée comme une procédure typique de la méthode des moindres carrés, où les composantes des fluences sont trouvées à partir de ce que nous appelons un problème "sur-déterminé" ($M \geq N$). Les divers algorithmes utilisés pour trouver le minimum de χ^2 se distinguent dans leur façon de traiter les deux derniers termes de l'équation 4.12. Seuls quelques codes, utilisés dans la dosimétrie des réacteurs, permettent de prendre en compte une information *a priori* sur la matrice de réponse (par exemple STAY'SL [115], LSL [116], LEPRICON [117], MSITER et MINCHI du PTB [118]) ; dans tous les autres cas, le terme $(\mathbf{R_0} - \mathbf{R})^{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{S_{R_0}^{-1}} \cdot (\mathbf{R_0} - \mathbf{R})$ de l'équation 4.12 est manquant. Si aucune information *a priori* n'est connue, le terme $(\mathbf{\Phi_0} - \mathbf{\Phi})^{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{S_{\Phi_0}^{-1}} \cdot (\mathbf{\Phi_0} - \mathbf{\Phi})$ peut être remplacé par une condition de forme du spectre [119] [120] dans le but d'obtenir un système non singulier d'équations normales pour la solution. Ceci constitue le contenu essentiel de la régularisation de Tikhnov [121].

Avec la contrainte $\mathbf{z} = \mathbf{R} \cdot \mathbf{\Phi}$, la minimisation de l'équation 4.12 conduit à des équations normales non-linéaires. Comme les valeurs ajustées sont supposées ne pas être éloignées des valeurs de l'information *a priori*, cette équation donnant la contrainte peut être remplacée par une approximation de Taylor au voisinage $\mathbf{R_0}$ et $\mathbf{\Phi_0}$, ce qui donne :

$$\mathbf{z} - \mathbf{R} \cdot \phi \Rightarrow \mathbf{z} - \mathbf{z_1} - \mathbf{z_R} \cdot (\mathbf{R} - \mathbf{R_1}) - \mathbf{z_\Phi} \cdot (\mathbf{\Phi} - \mathbf{\Phi_1}) \tag{4.13}$$

où $\mathbf{z_1} = \mathbf{R_0} \cdot \mathbf{\Phi_0}$ et $\mathbf{z_R}$ et $\mathbf{z_\Phi}$ sont les dérivées matricielles de $\mathbf{z}$ à $\mathbf{R_0}$ et $\mathbf{\Phi_0}$, avec $\mathbf{z_\Phi} = \mathbf{R_0}$ et $\mathbf{z_R} = \mathbf{\Phi_0}$.

L'ajustement moindres carrés linéaire est accompli avec l'équation 4.13. La solution

pour le vecteur fluence et sa matrice incertitude est [122] :

$$\mathbf{\Phi} = \mathbf{\Phi_0} + \mathbf{S_{\Phi_0}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{W^{-1}} \cdot (\mathbf{z_0} - \mathbf{R_0} \cdot \mathbf{\Phi_0}) \tag{4.14}$$

$$\mathbf{S_\Phi} = \mathbf{S_{\Phi_0}} - \mathbf{S_{\Phi_0}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{W^{-1}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{S_{\Phi_0}} \tag{4.15}$$

avec la matrice "poids" :

$$\mathbf{W} = \mathbf{S_{z_0}} + \mathbf{z_R} \cdot \mathbf{S_{R_0}} \cdot \mathbf{z_R} + \mathbf{S_{\Phi_0}} \cdot \mathbf{S_\Phi} \tag{4.16}$$

D'après les équations 4.14, 4.15 et 4.16, l'introduction d'informations *a priori* dans le formalisme des moindres carrés conduit à des équations normales, où seule une inversion de la matrice $(M \times M)$ $\mathbf{W}$ au lieu de la matrice $(N \times N)$ $\mathbf{B}$ de l'équation 4.11 est requise. Au vu du signe moins dans l'équation d'incertitude, celle-ci est en fait réduite après ajustement. D'après les équations 4.14 et 4.15, les solutions et leurs matrices d'incertitude dépendent fortement des valeurs des informations *a priori* $\mathbf{\Phi}$ et de la matrice d'incertitude *a priori* $\mathbf{S_{\Phi_0}}$. De plus, l'apparition de valeurs de fluence négatives a été observée.

En pratique, le spectre *a priori* n'est pas souvent bien connu avec une échelle absolue. Dans ce cas, le facteur d'échelle pour la fluence doit être déterminé par le code de déconvolution.

Selon l'équation 4.12, les deux informations *a priori*, à savoir la matrice de réponse $\mathbf{R_0}$ et la fluence $\mathbf{\Phi_0}$, sont considérées de la même façon, c'est-à-dire que ces quantités doivent être ajustées. C'est la philosophie prônée par le guide ISO [123] et de la méthodologie LEPRICON [117] : toutes les quantités mesurées, celles qui sont actuellement mesurées et les données quantifiées auparavant, doivent être incluses dans la procédure d'ajustement.

Il existe une autre manière d'ajuster les paramètres qui n'est pas encore établie de façon claire dans la déconvolution de la fluence particulaire. Il s'agit en fait de considérer la fonction comme un paramètre à part et d'employer la procédure d'ajustement avec ce paramètre gardé constant, puis à accomplir la propagation d'incertitude après coup. Dans ce cas, le second terme du membre de droite de l'équation 4.12 est nul. La solution de ce modèle est similaire à celle des équations 4.14 et 4.15, sauf que l'expression pour la matrice $\mathbf{W}$ ne contient pas le terme $\mathbf{W}$. La propagation de l'incertitude donne alors (avec la nouvelle matrice $\mathbf{W_1}$ au lieu de $\mathbf{W}$) :

$$\mathbf{S_\Phi} = \mathbf{S_{\Phi_0}} - \mathbf{S_{\Phi_0}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{W_1^{-1}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{S_{\Phi_0}} + \mathbf{S_{\Phi_0}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{W_1^{-1}} \cdot \mathbf{z_R} \cdot \mathbf{S_{R_0}} \cdot \mathbf{z_R} \cdot \mathbf{W_1^{-1}} \cdot \mathbf{z_\Phi} \cdot \mathbf{S_{\Phi_0}} \tag{4.17}$$

Ce modèle est différent de l'ajustement usuel des moindres carrés, a été peu employé mais présente des avantages dans les cas où les fonctions de réponses sont connues avec des incertitudes faibles.

La construction de la matrice $\mathbf{S_{R_0}}$ présente doit être menée de façon rigoureuse comme cela est indiqué dans le fichier d'incertitude ENDF [124]. Le package HEPRO [122] donne la possibilité d'inclure les incertitudes dues à l'étalonnage énergétique des détecteurs et aux paramètres de résolution dans les problèmes de déconvolution "multi-canaux".

4.1.2.3 La méthode des moindres carrés non linéaires

La méthode des moindres carrés linéaires, bien établie dans les codes STAY'SL [115], DIFBAS [125] et DIFMAZ [122] et dans la méthodologie LEPRICON [117], est l'algorithme de déconvolution recommandé lorsque de bonnes informations *a priori* et des mesures cohérentes sont disponibles. L'inconvénient majeur de cette méthode est qu'il est impossible d'exclure les valeurs de fluence négatives. Pour tenir compte de la condition de fluences non-négatives, une autre méthode a été mise au point dans le code SAND-II [126] dans un premier temps, puis dans les codes LSL-M2 [116] et GRAVEL [122]. Dans ce cas, ce ne sont plus les éléments de groupes de fluence $\mathbf{\Phi}_\nu$ mais leurs logarithmes $\ln \mathbf{\Phi}_\nu$ qui sont déterminés par une procédure spéciale d'itération minimisant une expression similaire à celle de l'équation 4.10 avec les logarithmes de z_{0i} au lieu de z_{0i}. Une méthode semblable est utilisée dans le code LOUHI [119], où les quantités inconnues Φ_ν sont exprimées comme des racines de nombres réels.

La solution SAND-II (renommée GRAVEL par la suite) est déterminée par une méthode spéciale de gradient [122] : l'itération débute avec un spectre $\Phi_\nu^{(1)}$. Des poids $w_{i\nu}^{(1)} = \frac{R_{i\nu}\Phi_\nu^{(1)}}{z_i^{(1)}}$ avec $z_i^{(1)} = \sum_\nu R_{i\nu} \cdot e^{\ln \Phi_\nu^{(1)}}$ sont calculés. Pour chaque itération, la solution à la $(\mathrm{k}+1)^{ième}$ étape est obtenue à partir de la solution précédente comme suit :

$$\ln \Phi_\mu^{(k+1)} - \ln \Phi_\mu^{(k)} = \lambda_\mu^{(k)} \cdot \sum_i (\ln z_{0i} - \ln z_i^{(k)}) \cdot \frac{w_{i\mu}^{(k)}}{\rho_i^2} \tag{4.18}$$

avec

$$\lambda_\mu^{(k)} = \Big(\sum_i \frac{w_{i\mu}^{(k)}}{\rho_i^2} \Big)^{-1} \tag{4.19}$$

ρ_i sont les écarts-types relatifs des z_{0i}, en d'autres termes $\rho_i = \sigma_{0i}/z_{0i}$. Ces quantités n'étaient pas incluses dans les versions originales des codes SAND-II. Il est à noter que l'algorithme BUNKI (SPUNIT) est similaire à l'algorithme SAND-II (GRAVEL) [127].

En partant des formules d'itération de SAND-II (équation 4.18), et en développant le membre de droite autour de $z_i^k = z_{0i} + \delta_i^k$, il vient au premier ordre :

$$\Phi_\mu^{(k+1)} = \Phi_\mu^{(k)} \frac{\sum_i \frac{z_{0i}}{z_i^k} \cdot \frac{R_{i\mu}}{z_{0i}} \cdot \frac{1}{\rho^2}}{\sum_i \cdot \frac{R_{i\mu}}{z_{0i}} \cdot \frac{1}{\rho^2}} \tag{4.20}$$

Cette valeur est également trouvée dans le code SPUNIT [128]. Les résultats trouvés par les deux codes sont très proches.

Pour la procédure d'itération dans le code SAND-II (GRAVEL), un spectre d'entrée initial est requis pour débuter le calcul. Il existe toujours une solution, mais le spectre solution dépend du spectre initial d'une manière qui n'est pas élucidée de façon correcte ce qui a pour conséquence qu'une propagation d'incertitude ne peut être accomplie. Il a été observé que la matrice **B** contrôle les diverses solutions [122] ; pour une matrice **B**, une solution unique existe, alors que pour une matrice **B** mal-conditionnée, beaucoup de solutions existent et dépendent du rang de **B**.

4.1.2.4 La méthode d'entropie maximale

Pour cette méthode, la théorie bayésienne est appliquée pour donner une base formelle pour l'utilisation des informations *a priori*. Ces informations ne sont pas limitées aux données mesurées et à leurs incertitudes, mais incluent également des corrélations et diverses contraintes physiques [129]. Quelquefois, la seule information *a priori* disponible est la non-négativité des fluences neutroniques. En partant d'une distribution de probabilité *a priori*, la probabilité *a posteriori* du théorème de Bayes peut être obtenue en utilisant la relation "la distribution *a posteriori* est proportionnelle à la distribution *a priori* multipliée par l'éventualité" [108].

L'entropie S de la distribution $f(x)$, dans la forme donnée par Skilling [130], est définie par :

$$S = -\int \{f(x) \ln\Big(\frac{f(x)}{f(x)^{DEF}}\Big) + f(x)^{DEF} - f(x)\} dx \tag{4.21}$$

où $f(x)^{DEF}$ est la distribution par défaut ou distribution *a priori*. Ceci est une généralisation de la formule usuelle d'entropie croisée :

$$S_{CE} = -\int \{f(x) \ln\Big(\frac{f(x)}{f(x)^{DEF}}\Big)\} dx \tag{4.22}$$

qui apparaît dans le premier terme de l'équation 4.21. Le second terme est une constante supplémentaire qui permet d'assurer que le maximum global de S (à $f(x) = f(x)^{DEF}$)

est zéro. Le troisième terme permet d'assurer qu'en l'absence de toute autre contrainte et que lorsque S est maximale, $f(x) = f(x)^{DEF}$.

Le principe d'entropie maximale fournit une règle pour déterminer une distribution positive et additive en partant de contraintes définies mais incomplètes. La distribution de probabilité $p(x)$ d'une variable x est un exemple de distribution positive et additive [131]. Elle est positive par construction et elle est additive, dans le sens où la probabilité globale dans un domaine est la somme des probabilités dans n'importe quel découpage de ce domaine en sous-domaines. Dans notre cas, la distribution positive et additive à déterminer est le spectre énergétique des neutrons, $f(x)$, les contraintes sont les mesures et les incertitudes expérimentales associées. Le principe d'entropie maximale stipule que parmi toutes les distributions $f(x)$ satisfaisant un ensemble de contraintes, celle qui doit être choisie est celle pour laquelle S_{CE} est maximal.

Nous rappelons que la déconvolution consiste à déterminer le spectre énergétique $f(E)$ à partir de la relation dérivée de l'équation matricielle 4.6, soit :

$$N_k + \varepsilon_k = \int R_k(E) f(E) dE \tag{4.23}$$

où N_k sont les mesures, R_k sont les fonctions de réponse et $f(E)$ sont les spectres énergétiques de neutrons. En pratique, le problème de déconvolution est habituellement formulé en utilisation la discrétisation. Pour ce faire, un spectromètre neutronique avec m détecteurs, un découpage énergétique est introduit avec des canaux d'énergie de largeur ΔE_i ($i = 1 \ldots n$ et $n > m$), le spectre $f(E)$ et les fonctions de réponse $R_k(E)$ sont remplacées par un spectre discrétisé f_i et des fonctions de réponse discrétisées R_{ki}. L'ensemble des spectres "acceptables" est défini en utilisant deux restrictions :

$$N_k + \varepsilon_k = \sum R_{ki} f_i, \quad k = 1, \ldots, m \tag{4.24}$$

$$\frac{\varepsilon_k^2}{\sigma_k^2} = \Omega \tag{4.25}$$

où σ_k sont les écarts-types associés aux mesures et Ω est le facteur statistique "khi carré". Ω est typiquement fixé comme étant égal au nombre de détecteurs. L'équation 4.25 est en fait une contrainte permettant de prendre en compte les erreurs inconnues ε_k^2 et suppose que les erreurs sont distribuées normalement avec une moyenne de zéro et des variances σ_k^2. Pour l'ensemble des spectres admissibles, nous voulons sélectionner celui qui maximise l'entropie S de la distribution,

$$S = -\sum \{ f_i \ln (f_i / f_i^{DEF}) + f_i^{DEF} - f_i \} \tag{4.26}$$

où f_i^{DEF} est le spectre par défaut discrétisé. L'équation 4.26 est de la même forme que celle donnée par Skilling [130].

Voici maintenant l'algorithme de déconvolution utilisant le principe d'entropie maximale, qui est en fait une modification de celui de Wilczek et Drapatz [132].

Le lagrangien associé avec la maximisation de 4.26 avec les contraintes 4.24 et 4.25 est de la forme :

$$L(f_i, \varepsilon_k, \lambda_k, \mu) = -\sum \{f_i \ln (f_i/f_i^{DEF}) + f_i^{DEF} - f_i\} - \sum \lambda_k \{\sum R_{ki} f_i - N_k - \varepsilon_k\} \\ -\mu \sum \{(\varepsilon/\sigma_k^2) \tag{4.27}$$

où λ_k, μ sont les $(m+1)$ multiplicateurs de Lagrange. La variation par rapport à f_i, ε_k et μ conduit à un ensemble de $(n+m+1)$ équations :

$$-\ln (f_i/f_i^{DEF}) - \sum \lambda_k R_{ki} = 0 \quad i = 1, \ldots, n \tag{4.28}$$

$$\lambda_k - 2\mu \frac{\varepsilon_k^2}{\sigma_k^2} = 0 \quad k = 1, \ldots, m \tag{4.29}$$

$$\sum \frac{\varepsilon_k^2}{\sigma_k^2} = \Omega \tag{4.30}$$

Les relations 4.28, 4.29 et 4.30 sont utilisées pour exprimer f_i, ε_k et μ en fonction des λ_k :

$$f_i = f_i^{DEF} \exp \sum \lambda_k R_{ki} \quad i = 1, \ldots, n \tag{4.31}$$

$$\varepsilon_k = \frac{\lambda_k \sigma_k^2}{2\mu} \quad k = 1, \ldots, m \tag{4.32}$$

$$\mu = (\sum \frac{(\lambda_k \sigma_k)^2}{4\Omega})^{\frac{1}{2}} \tag{4.33}$$

La variation par rapport aux λ_k conduisent à la relation 4.24, et en utilisant 4.31, 4.32 et 4.33, les m équations sont écrites comme suit :

$$N_k + \lambda_k \sigma_k^2 (\Omega / \sum (\lambda_j \sigma_j)^2)^{1/2} - \sum R_{jk} f_j^{DEF} \exp - \sum \lambda_1 R_{1j} = 0, \quad k = 1, \ldots, m \tag{4.34}$$

Ainsi, le problème initial d'optimisation stipulé a été réduit à un système de m équations à m inconnues $\lambda_1, \ldots, \lambda_m$. Le système d'équations 4.34 peut être transformé en recherchant le maximum de la fonction potentiel, Z, par rapport à λ_k [131] :

$$Z = -\sum f_i^{DEF} \exp\{-\sum \lambda_k R_{ki}\} - (\Omega \sum (\lambda_k \sigma_k)^2)^{\frac{1}{2}} - \sum N_k \lambda_k \qquad (4.35)$$

Il est ainsi possible de reformuler le problème en termes de recherche du maximum de Z.

4.2 Le code de déconvolution SPEC4

4.2.1 Généralités sur le code de déconvolution SPEC4

Les compteurs 0, 1, 2 et 3 du ROSPEC couvrent le domaine d'énergie des neutrons de 50 keV à 4,5 MeV. Ils utilisent le phénomène de la diffusion élastique des neutrons sur les protons du gaz pour mesurer leurs spectres énergétiques. Les données récoltées par ces détecteurs sont des distributions d'impulsions de protons de recul, qui doivent subir un traitement mathématique afin d'obtenir les informations voulues sur les spectres neutroniques mesurés. Ainsi, un code de déconvolution par défaut est utilisé [43] [64] pour l'ensemble des quatre détecteurs.

4.2.1.1 Présentation du code

L'objectif pour le code de déconvolution appelé originellement SPEC4 est double :

1) déduire le spectre de protons de recul noté $P(E)$ à partir des distributions d'impulsions mesurées ;
2) déterminer la distribution d'énergie des neutrons à partir du (ou des) spectre(s) de protons.

Soit un spectre d'impulsions composé de N canaux (N=256 pour le ROSPEC), le nombre de coups dans tout canal considéré peut être donné par :

$$A_j = \int_0^\infty \Phi_n(E') R_j(E') dE', \quad j = 1, \ldots, N \qquad (4.36)$$

ou R_j est la fonction de réponse qui donne le nombre de coups dans le canal j pour une unité de fluence de neutrons monocinétiques d'énergie comprise entre E' et $E' + dE'$.

L'intégrale donnée dans la relation 3.41 peut être estimée en accomplissant une discrétisation. Le nombre de termes de la somme peut être réduit en groupant les canaux adjacents du spectre pour constituer M groupes d'énergie croissante, soit

$$A_j = \sum (\Phi_n)_i R_{ij}, \quad i, j = 1, \ldots, M \tag{4.37}$$

A_j représente maintenant le nombre de coups dans le groupe j. R_{ij} est la réponse en protons de recul dans le groupe d'énergie j par les neutrons incidents appartenant au groupe d'énergie i.

Le code SPEC4 résoud l'équation 4.37 en utilisant la méthode de soustraction spectrale. C'est cette méthode qui va être présentée par la suite.

Pour appliquer cette méthode, il suffit de remarquer que la matrice de réponse de l'équation 4.37 (R_{ij}) est triangulaire du fait que les protons de recul ne peuvent posséder une énergie supérieure à celle du neutron incident qui lui a donné naissance. De ce fait, $R_{ij} = 0$ si $j > i$.

Ainsi, la fluence neutronique dans le groupe d'énergie le plus élevé ($E = E_{MAX} = E_M$) peut être déterminé en réarrangeant l'équation 4.37 :

$$(\Phi_n)_j = A_M / R_{MM} \tag{4.38}$$

La fluence des neutrons dans les autres groupes d'énergie peut être déterminée en soustrayant successivement les coups dus aux neutrons dans les groupes d'énergies supérieures :

$$(\Phi_n)_j = \frac{(A_j - \sum((\Phi_n)_j R_{ij}))}{R_{ij}}, \quad j = M-1, M-2, \ldots, 1 \tag{4.39}$$

où la somme va de $i = j + 1$ à M [133]. Au fur et à mesure que la déconvolution se réalise, il se produit inévitablement une accumulation des erreurs dues aux incertitudes sur les fonctions de réponse et aux incertitudes statistiques des mesures. Cette propagation des erreurs peut avoir pour conséquence la production de résultats non physiques. Nous y reviendrons ultérieurement.

Le code SPEC4 génère lui-même les fonctions de réponse nécessaires pour résoudre les équations 4.38 et 4.39. Ces fonctions dépendent des propriétés du compteur (diamètre et gaz de remplissage) et de l'énergie du neutron incident.

Pour générer les fonctions de réponse, le code SPEC4 considère que la distribution d'impulsions est constituée de trois types de spectres de protons de recul. Le premier est dû aux protons qui ont été arrêtés complètement dans le gaz et forme une distribution rectangulaire et uniforme jusqu'à $E = E_{MAX}$. Des coups peuvent être également générés pour les protons qui n'ont pas été stoppés dans le gaz et qui heurtent la paroi du compteur (effet de paroi). Les protons peuvent être engendrés par les neutrons dont l'énergie est dans les limites de détection du compteur ($E_n \leq E_{MAX}$) ou par des neutrons d'énergie supérieure à la limite haute du domaine du compteur. Le code traite ces deux types de spectres séparément.

Pour calculer les fonctions de réponse, SPEC4 utilise l'algorithme développé par Snidow et Warren [92] permettant de calculer la fraction des protons qui subissent l'effet de paroi, que nous avons détaillé dans le chapitre 3 :

$$1 - 3\frac{R(E)}{4a} + \frac{R(E)^3}{16a^3} \tag{4.40}$$

où $R(E)$ est le parcours du proton d'énergie E dans le gaz et a le rayon du compteur. Il ne prend en compte que les neutrons dont l'énergie correspond aux limites de détection du compteur proportionnel concerné ($E_n \leq E_{MAX}$).

Une comparaison approfondie des fonctions de réponse obtenues avec la méthode de Snidow et un spectre expérimental obtenu avec des irradiations par des neutrons monocinétiques montre de légères disparités [92]. Il a été montré que l'accord peut être amélioré en incorporant un facteur de correction dans la fonction de réponse. De plus, il a été déterminé que ces facteurs de correction étaient une fonction lissée de $R(E)/a$ et un invariant du pouvoir d'arrêt du gaz du compteur. Dans SPEC4, la routine de Snidow détermine le

facteur de correction approprié en interpolant un tableau de facteurs de correction avec $R(E)/a$.

La contribution à la distribution d'impulsions des protons de recul due aux neutrons d'énergie supérieure à E_{MAX} est calculée par un autre algorithme. La sous-routine SPEC 2S génère le spectre de protons de recul pour un compteur à gaz donné en fonction d'un spectre d'entrée de neutrons de haute énergie. Ce spectre de protons de recul est calculé avec la même échelle d'énergie que le spectre d'impulsions. Le code SPEC4 soustrait le spectre de protons de recul calculé par la sous-routine SPEC2 S du spectre d'amplitude observé, canal par canal. Le spectre SPEC 2S est normalisé avant soustraction en comparant le nombre respectif de coups dans les deux spectres sur un domaine d'énergie allant de E_{MAX} à $1,05E_{MAX}$.

Une fois que les coups correspondant aux neutrons à haute énergie ont été soustraits du spectre d'impulsions, les fonctions de réponse générées par la routine SNIDOW peuvent être utilisées pour déconvoluer le spectre corrigé conformément aux équations 4.38 et 4.39.

4.2.1.2 Mise en œuvre du code lors de l'utilisation du ROSPEC

Le code de déconvolution du ROSPEC a été dérivé du code SPEC4 écrit par Benjamin et *al.* [43] pour le traitement du spectre de protons de recul d'un compteur seul. Le code a été adapté au ROSPEC dans les années 70 et a été renommé ZSPEC4.

Le code ZSPEC4 a été modifié pour déconvoluer quatre spectres séquentiellement ainsi que pour permettre le calcul des grandeurs dosimétriques.

Le programme ZSPEC4 est écrit en FORTRAN. Le programme commence par lire les données relatives aux distributions d'impulsions en provenance des compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6. Ces données sont lues dans un fichier temporaire qui est écrit par le programme ROSP.EXE juste avant de faire appel au code ZSPEC4. Ce fichier temporaire contient également le temps écoulé pour l'acquisition ainsi que les valeurs d'échelle pour chaque spectre. Ces facteurs, initialement fixés à 1, peuvent être modifiés par l'utilisateur si les temps de mesure entre les compteurs sont différents. Le programme lit ensuite les données lui permettant de faire la soustraction du bruit de fond dans un fichier appelé ZSPEC4.BKG. Le spectre correspondant au bruit de fond est normalisé en fonction du temps, et si nécessaire, les facteurs d'échelle le sont aussi avant soustraction du spectre en cours. Le programme ouvre alors un fichier appelé ZTABLES.SP4 qui contient les

parcours des protons pour les trois types de gaz utilisés dans le ROSPEC : H_2, CH_4 et Ar.

Les valeurs de parcours sont données pour une pression de 1 atmosphère et une température de 15 ° C, pour 93 énergies de protons de 1 keV à 10 MeV. Ces énergies sont listées dans le fichier ZTABLES.SP4 et stockées dans une matrice.

Ce fichier contient aussi un tableau de facteurs de correction des fonctions de réponse pour différentes valeurs de R/a. Ces facteurs sont utilisés pour modifier les réponses telles que calculées par la méthode SNIDOW. D'autres données sont enregistrées dans le fichier ZTABLES.SP4. Il s'agit des propriétés et des paramètres opérationnels pour les quatre compteurs, en partant du SP6. Ces paramètres sont très importants pour le processus de déconvolution et sont présentés ici [133] :

- CAL : gain de compteur en MeV/canal tel que determiné par l'étalonnage aux neutrons monocinétiques (voir chapitres 2 et 3)
- BBIAS : correction rétroactive en canaux telle que déterminée par la calibration aux neutrons monocinétiques. L'énergie dans chaque canal proton est donc donnée par $E = CAL \times N + BBIAS$ où N est le numéro du canal.
- EBOT : énergie minimale des neutrons mesurée par le compteur en MeV. Typiquement, EBOT correspond environ au canal 60 dans le spectre d'impulsions.
- EMAX : énergie maximale des neutrons mesurés par le compteur en MeV. Typiquement, EMAX correspond environ au canal 190 dans le spectre d'impulsions.
- SMT : la valeur 1 (par défaut) indique que le lissage des données est nécessaire.
- UFLXMN : Énergie minimale en MeV à utiliser pour lisser le spectre de neutrons. Généralement, cette énergie est égale à EBOT.
- RAD : rayon du compteur en centimètres.
- GPH : pression de l'hydrogène en atmosphères à 15 ° C.
- GPC : pression du méthane en atmosphères à 15 ° C.
- GPA : pression de l'argon en atmosphères à 15 ° C.
- RES : résolution énergétique du compteur (largeur à mi-hauteur) en pourcentage.
- RCF : facteur de correction pour les parcours dans le gaz.

La particularité de la déconvolution réalisée, en utilisant ces paramètres avec le programme ZSPEC4, est que le processus numérique démarre avec le compteur de plus haute énergie, le SP6 et continue avec le SP2-10, puis avec le SP2-4 et finalement avec le SP2-1.

Avant de déconvoluer les données spectrales de chaque compteur, l'utilisateur doit en-

trer un spectre de départ pour les énergies supérieures à EMAX. Dans le cas du compteur de plus haute énergie, SP6, un spectre d'énergie supérieure à 4,5 MeV est nécessaire. Les données sont le flux par unité de léthargie en fonction de l'énergie.

Le programme ZSPEC4 génère ensuite une structure de bandes d'énergies pour le compteur, basées sur les valeurs de EBOT, EMAX et RES. Le nombre de bandes d'énergie créées est M (équation 4.37). Une matrice contenant les valeurs de l'énergie médiane EMID de chaque canal est également créée, ainsi qu'une matrice contenant les sections efficaces de diffusion élastique en barns selon la formule :

$$\sigma_{n,p}(I) = \frac{9,42477}{(C+A^2)} + \frac{3,141592}{(C+B^2)}, \quad I = 1, \ldots M \tag{4.41}$$

où $A = 0,09415 \times EMID(I) - 1,86 + 1,3 \times 10^{-4} \times EMID(I)^2$, $B = 0,442 + 0,13 \times EMID(I)$ et $C = 1,206 \times EMID(I)$ [133].

La table des parcours des protons est créée en se basant sur les parcours listés dans ZTABLES.SP4, puis elle est normalisée par rapport à la pression partielle du gaz dans le compteur comme suit :

$$R(L) = \Big(\frac{GPH}{RH(L)} + \frac{GPC}{RC(L)} + \frac{GPA}{RA(L)}\Big)^{-1} \tag{4.42}$$

où $L = 1,93$.

La densité atomique des noyaux d'hydrogène K (dans l'équation 4.36) est calculée en se basant sur les pressions partielles de H_2 et CH_4 dans le compteur. Une fonction de réponse notée YCH(I) pour I=$1, \ldots, J$ est calculée pour chaque canal d'énergie grâce à la routine de SNIDOW. Elle est ensuite ajustée grâce aux facteurs de correction empiriques, puis normalisée en fonction du nombre de noyaux d'hydrogène et de la section efficace de diffusion élastique à EMID(J). Finalement, une réponse différenciée est calculée par soustraction des matrices : $R_{ij} = YCH(I) - YCH(I-1)$. L'élément diagonal R_{ij} est fixé égal à YCH(J) pour donner le facteur de conversion entre les coups dus aux protons de recul et la fluence des neutrons incidents (équation 4.38).

La routine SPEC ZS génère alors le spectre de protons de recul dû au spectre choisi pour les hautes énergies. Ce spectre de 256 canaux est créé en tenant compte des paramètres CAL et BBIAS du compteur. Ceci permet une correspondance de 1 pour 1 entre le spectre créé et le spectre du compteur.

Le programme compare ensuite le nombre total d'événements de recul (AR) dans la région entre EMAX et 1,05 EMAX (typiquement les canaux 190-200) et celui des canaux précédents. Le rapport de ces deux sommes donne le rapport des intensités dans la région de recouvrement entre deux compteurs successifs. Ce rapport est utilisé pour normaliser le spectre créé par SPEC ZS avec les données spectrales. Ces données sont lissées. Ce lissage est effectué grâce à une sous-routine qui utilise un algorithme à moyenne glissante. Le spectre de protons de recul est ensuite soustrait du spectre du compteur lissé [133].

Le programme déconvolue les données du compteur en commençant par le groupe d'énergie le plus élevé. La fluence neutronique pour ce groupe d'énergie est déterminée en utilisant l'équation 4.38. La fluence neutronique des groupes d'énergie suivants est déduite en appliquant l'équation 4.39. SPEC4 continue la déconvolution séquentiellement du compteur SP6 jusqu'au compteur SP2-1. Le code produit ainsi un spectre de neutrons dans le domaine d'énergie de 50 keV à 4,5 MeV.

L'ensemble des opérations décrite se fait de façon quasi-automatisée et l'utilisateur n'a quasiment pas à intervenir. De ce point de vue, le code ZSPEC4 permet un confort d'utilisation appréciable pour un opérateur non averti.

4.2.2 Problématique de la déconvolution du ROSPEC

Dans le cadre de l'étude approfondie du fonctionnement du ROSPEC, des dysfonctionnements relatifs à la déconvolution existante ont été mis en évidence [73] [134]. En effet, certaines mesures notamment, dans le champ généré par une source de californium nue ont fait appraître des résultats non physiques. Il s'agit en l'occurence de débits de fluence négatifs aux environs de 100 keV (figure 4.1).

C'est le compteur SP2-1 qui couvre ce domaine d'énergie. Pour expliquer ce résultat, nous pouvons émettre plusieurs hypothèses. La première consiste à invoquer les propriétés du compteur concerné. Cependant, il est facile d'écarter cette hypothèse car aucun phénomène physique ne peut expliquer une fluence négative qui est intrinsèquement une quantité positive. La seconde hypothèse consiste à se tourner vers une explication mathématique.

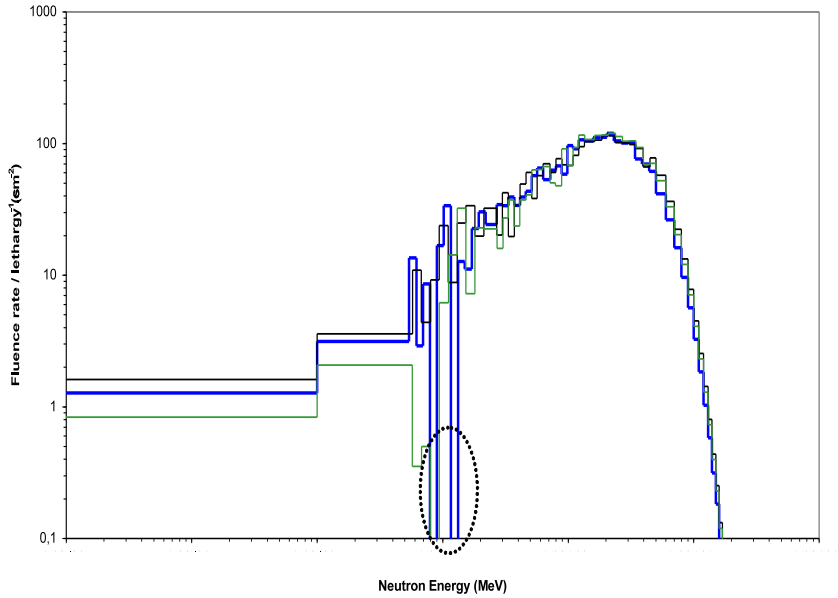


Fig. 4.1 – Distribution énergétique des neutrons donnée par le ROSPEC pour Cf nue. Apparition de fluences négatives aux alentours de 100 keV

Comme nous l'avons affirmé précédemment, le code SPEC4 déconvolue séquentiellement les données des compteurs, du SP6 jusqu'au compteur de plus basse énergie, le SP2-1. La propagation des erreur se fait donc dans l'ordre de la déconvolution. Il est alors logique de dire qu'il y a une accumulation des erreurs dans le dernier spectre déconvolué ; accumulation qui peut se traduire par l'apparition de fluences négatives. Pour vérifier cette hypothèse et corriger ce problème, nous avons choisi de faire appel à un code de déconvolution alternatif, nommé MAXED.

4.3 Le code de déconvolution alternatif MAXED

4.3.1 Présentation du code MAXED

MAXED est un code écrit en langage FORTRAN qui applique le principe d'entropie maximale pour la déconvolution des mesures spectrométriques des neutrons [135]. L'approche suivie dans MAXED présente des caractéristiques intéressantes : il permet l'inclusion d'informations *a priori* d'une façon mathématiquement bien définie et cohérente ; pour déterminer le spectre solution, il utilise un algorithme justifiable sur la base d'arguments qui trouvent leur origine dans la théorie mathématique de l'information ; et finalement, le spectre solution est forcément une fonction non-négative.

À l'origine, le code MAXED a été écrit spécifiquement pour la déconvolution de données issues du spectromètre neutronique multisphères, mais a été modifié pour les données multi-canaux (par exemple, pour les spectromètres à protons de recul). Parmi les applications du principe d'entropie maximale pour la déconvolution de spectres de neutrons, notons celle d'Itoh et Tsunoda, pour les détecteurs à protons de recul [136] et celle de Zhigunov et *al.* [137] qui illuste la méthode avec un exemple de données d'un spectromètre neutronique multisphères.

4.3.2 Utilisation pratique de MAXED

Éxécuter MAXED nécessite la création d'un certain nombre de fichiers de départ. Ces fichiers fournissent au code les informations sur les fonctions de réponse des détecteurs mais également sur les mesures et le spectre par défaut (informations *a priori*).

Pour gérer ces fichiers, l'utilisateur a la possibilité de créer un fichier de contrôle comme suit :

```
bi207g.phs                              fichier avec les mesures
..\..\$inp\response\ddhg50g.rsp         fichier avec la matrice de réponse (MR)
mxmc_bi2                                nom du fichier de sortie
..\..\$inp\def_spec\flat_fine.flu       fichier avec le spectre par défaut
0.2,1.7                                 domaine d'énergie des mesures
0.33,1.96                               domaine d'énergie de la MR
```

```
5.00                                    facteur chi au carré
20000                                   nombre max. d'itérations
3,1
1 1
0 0
```

La grande difficulté pour l'utilisation de ce code réside dans la construction des fichiers d'entrée. En effet, ces fichiers ont tous un format particulier qu'il faut respecter scrupuleusement. Nous allons passer en revue les trois types de fichiers essentiels pour la déconvolution, à savoir le fichier donnant la distribution d'impulsions de protons de recul, le fichier donnant les fonctions de réponse et le fichier donnant le spectre par défaut.

4.3.2.1 Construction du fichier de mesures

Considérons l'exemple des mesures du compteur SP2-1 avec la source de californium. Une copie d'écran du fichier est donnée dans la figure 4.2.

Les paramètres tels que l'unité d'énergie (MeV), le format des mesures (coups/canal), et le nombre de canaux correspondant aux protons de recul pour ce compteur (148 ici), sont donnés dans la deuxième et troisième ligne du fichier. Les mesures sont données selon le format suivant :

- la première colonne indique la valeur de l'énergie pour chaque canal en MeV ;
- la deuxième colonne indique la valeur du spectre d'impulsions en coups par canal ;
- la troisième colonne indique l'incertitude en coups par canal. Sur l'exemple, l'incertitude a été fixée dans un premier temps à 100%. Mais, pour tenir compte de la statistique de comptage, nous avons changé *a posteriori* cette incertitude et l'avons fixée à $1/\sqrt{N}$ où N est le nombre total de coups mesurés.

Le fichier doit être nommé avec une extension ".phs" (PHS : Pulse Height Spectrum) pour être correctement détecté et lu par le code.

4.3.2.2 Construction du fichier du spectre par défaut

Nous reprenons le même exemple du compteur SP2-1 avec une source de californium nue et nous considérons dans ce cas le fichier du spectre par défaut. Une copie d'écran

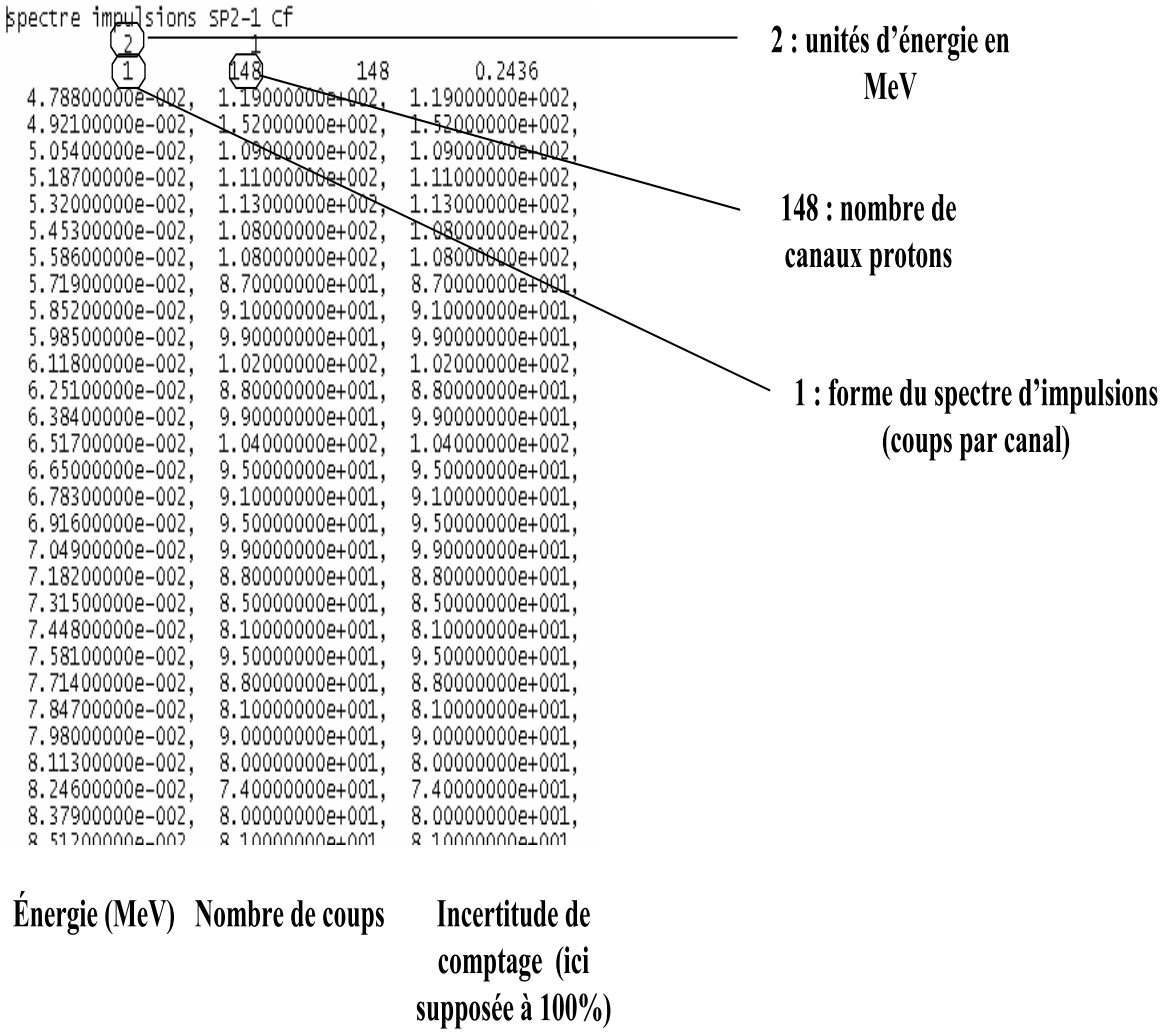


Fig. 4.2 – Fichier d'entrée présentant les mesures du compteur SP2-1 avec la source de californium

(figure 4.3) permet d'en avoir un aperçu.

Deux possibilités s'offrent à l'utilisateur. Il peut entrer un spectre par défaut (il s'agit d'informations *a priori*) qui a été obtenu par calcul ou par l'intermédiaire d'un instrument

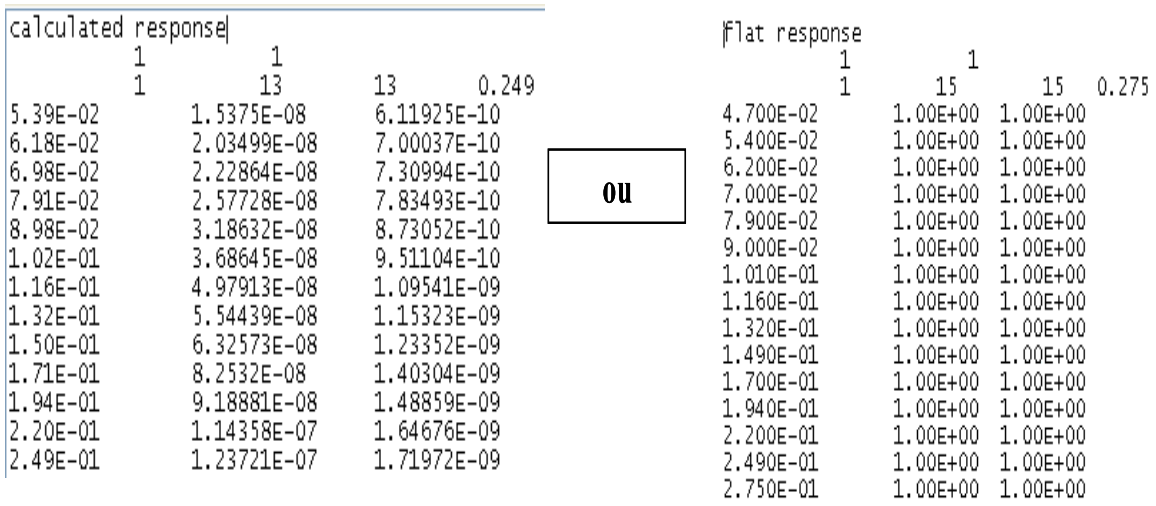


Fig. 4.3 – Fichier d'entrée donnant le spectre par défaut du compteur SP2-1 avec la source de californium

de mesure indépendant. Dans notre cas, le spectre par défaut calculé est obtenu grâce au code MCNP. La deuxième possibilité consiste à entrer un "spectre plat", c'est-à-dire un spectre neutron uniforme.

Les deuxième et troisième lignes précisent les paramètres de lecture du fichier "spectre par défaut" pour le code. Le premier paramètre indique le format du spectre par défaut (1 correspond à $d\Phi/dE$) ; le second indique l'unité d'énergie (1 signifie que l'énergie est donnée en MeV) ; le troisième paramètre est redondant ; les deux nombres suivants indiquent le nombre de canaux neutron du spectre par défaut et le dernier nombre indique la valeur de l'énergie la plus élevée du spectre par défaut.

Le spectre par défaut est entré selon le format suivant :

- la première colonne indique la valeur de l'énergie pour chaque canal en MeV ;
- la deuxième colonne indique la valeur du spectre par défaut. L'unité choisie dépend du type de spectre entré. S'il s'agit d'un spectre calculé, les valeurs sont celles données par le calcul MCNP. Si le spectre par défaut est un spectre "plat", ses valeurs sont toutes égales à 1 ;
- la troisième colonne indique l'incertitude. L'incertitude a été fixée à 100% pour le specre "plat". Si le spectre par défaut est un spectre calculé, l'incertitude entrée est l'incertitude statistique donnée par le code MCNP.

Le fichier est nommé avec une extension ".def" afin qu'il soit lu correctement par MAXED.

4.3.2.3 Construction du fichier de la matrice de réponse

Le fichier de la matrice de réponse est un fichier primordial pour MAXED puisqu'il contient les fonctions de réponse des détecteurs. Nous allons revenir sur la notion de fonctions de réponse et de matrice de réponse, ces deux quantités étant des caractéristiques intrinsèques d'un détecteur donné. La fonction de réponse d'un compteur proportionnel sphérique gazeux à protons de recul donne la distribution énergétique d'impulsions des protons pour des neutrons monoénergétiques incidents d'énergie E_n. La matrice de réponse d'un détecteur donné est la matrice constituée d'un ensemble de fonctions de réponse sur une gamme d'énergie de neutrons (figure 4.4).

De façon, générale, la matrice de réponse de ce type de détecteur est triangulaire car le proton de recul ne peut avoir une énergie supérieure à celle du neutron qui lui a donné naissance.

Il faut un fichier de matrice de réponse par détecteur. La détermination de la matrice

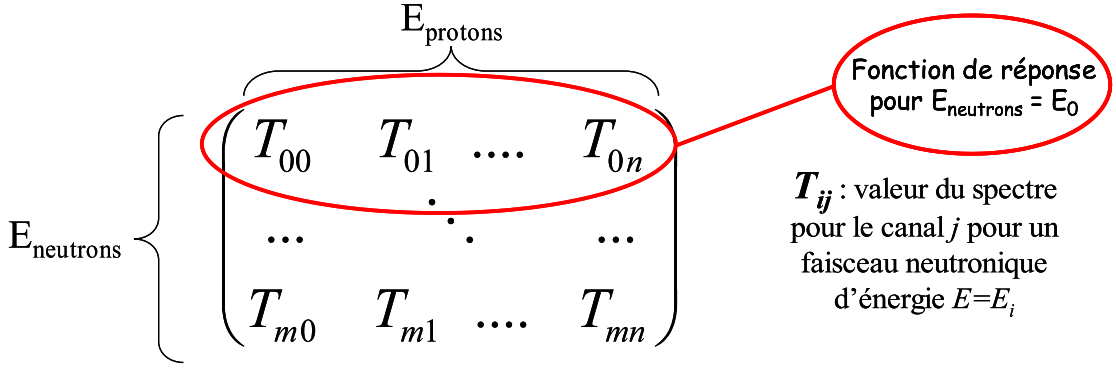

E protons
E neutrons
T00 T01 .... T0n
Tm0 Tm1 .... Tmn
Fonction de réponse pour Eneutrons = E0
Tij : valeur du spectre pour le canal j pour un faisceau neutronique d'énergie E=Ei

Fig. 4.4 – Fonctions de réponse et matrice de réponse pour un compteur proportionnel à protons de recul

de réponse peut se faire expérimentalement ou par le calcul. L'utilisateur peut fixer à loisir la précision de la matrice de réponse. Autrement dit, pour un détecteur donné, il peut calculer autant de fonctions de réponse qu'il veut à condition de respecter certaines règles :

- les fonctions de réponse doivent être suffisamment nombreuses pour obtenir une précision convenable pour la déconvolution. Cela signifie qu'elles doivent être déterminées pour plusieurs valeurs d'énergie de neutrons E_n. Ces valeurs sont généralement choisies régulièrement espacées dans le domaine de sensibilité du compteur.
- des fonctions de réponse supplémentaires sont déterminées dans les énergies supérieures à E_{MAX} afin de prendre en compte l'influence des neutrons de haute énergie. La matrice de réponse est complétée dans le domaine des hautes énergies (jusqu'à 10 MeV).

Le fichier contenant la matrice de réponse doit être édité dans un format bien particulier pour être lisible par MAXED. Une copie d'écran de la matrice de réponse du détecteur SP2-1 est donnée dans la figure 4.5.

Il est nécessaire de préciser un certain nombre de paramètres pour le fichier de matrice de réponse :

- la valeur du coefficient directeur CAL de la droite d'étalonnage énergétique : $E_p = CAL * (N + BBIAS)$ où N est le numéro du canal et $BBIAS$ est la valeur du décallage de la droite par rapport à l'origine ;
- la valeur de la **première énergie neutron** $E_0 = 0,045$ **MeV** pour laquelle la première fonction de réponse est calculée ;

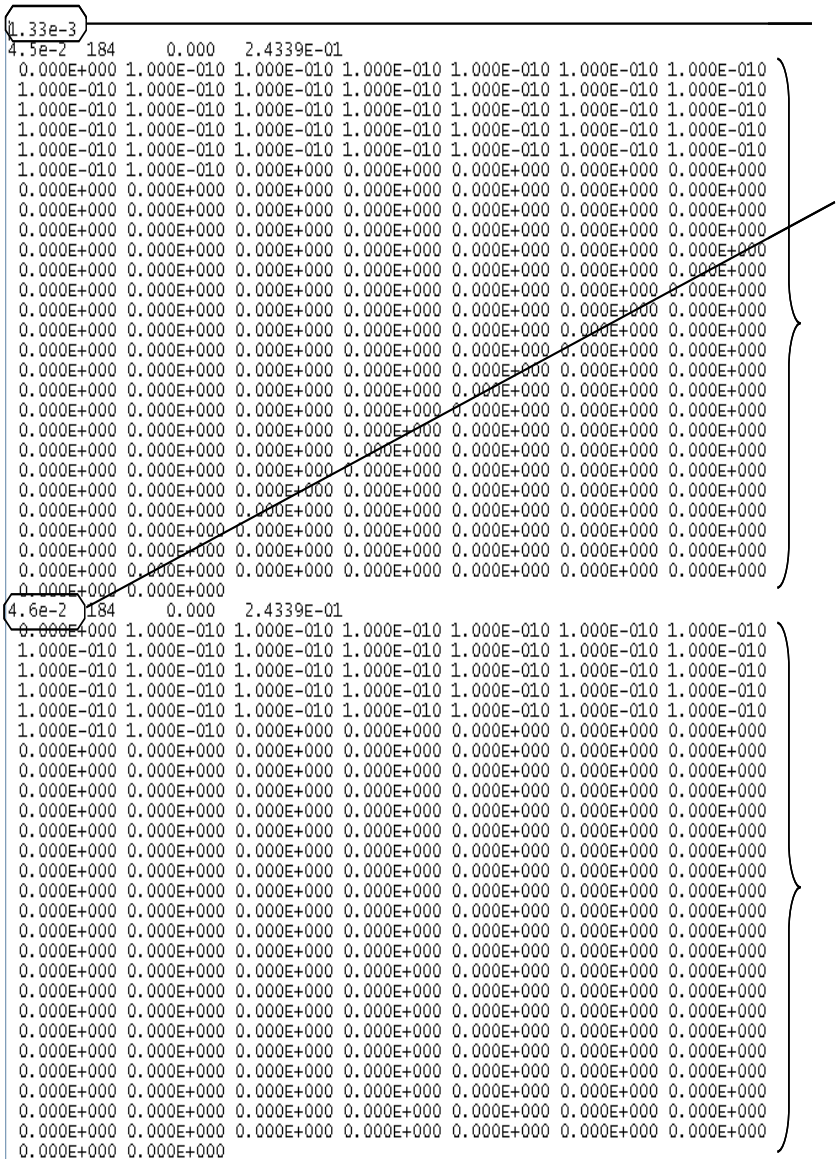

1,33 : valeur de CAL (coef. directeur de la droite d'étalonnage du compteur)
4,6e-2 : Énergie du neutron incident en MeV
Fonction de réponse pour les canaux protons du compteur SP2-1 pour un faisceau de neutrons monocinétique de 45 keV
Fonction de réponse pour les canaux protons du compteur SP2-1 pour un faisceau de neutrons monocinétique de 46 keV
etc...

FIG. 4.5 – Matrice de réponse du détecteur SP2-1

- le nombre de canaux d'énergie proton E_p ;
- la valeur de la borne inférieure du domaine des énergies proton ;
- la valeur de la borne supérieure du domaine des énergies proton ;
- les valeurs du spectre de protons de recul pour $E_n = 0,045$ MeV. Elles sont écrites les unes après les autres dans l'ordre croissant des E_p. Le code impose de les ranger

selon un format en sept colonnes ;
- la valeur de la **deuxième énergie neutron** E_1 = **0,046 MeV** pour laquelle la deuxième fonction de réponse est calculée ;
- les valeurs du spectre de protons de recul pour $E_1 = 0,046$ MeV.
- et ainsi de suite jusqu'à la dernière énergie neutron à savoir 10 MeV.

Ce fichier est construit pour chaque détecteur en gardant à l'esprit que la matrice de réponse doit être précise, ce qui impose un choix au niveau du nombre de fonctions de réponse calculées. Nous avons choisi de fixer ce nombre à environ 200 dans le domaine de sensibilité du compteur concerné. Au-delà de ce domaine, le découpage est moins fin et les fonctions de réponse sont calculées tous les 100 keV.

Voici les choix de découpage énergétique pour les matrices de réponse (autrement dit, le pas ΔE_n entre deux fonctions de réponse successives) :

- compteur SP2-1 : pour $50 \leq E_n \leq 250$ keV, $\Delta E_n = 1$ keV et $\Delta E_n = 100$ keV pour 250 keV $\leq E_n \leq 10$ MeV ;
- compteur SP2-4 : pour $150 \leq E_n \leq 700$ keV, $\Delta E_n = 2$ keV et $\Delta E_n = 100$ keV pour 700 keV $\leq E_n \leq 10$ MeV ;
- compteur SP2-10 : pour $400 \leq E_n \leq 1500$ keV, $\Delta E_n = 5$ keV et $\Delta E_n = 100$ keV pour 700 keV $\leq E_n \leq 10$ MeV ;
- compteur SP6 : pour 1 MeV $\leq E_n \leq$ 4,5 MeV, $\Delta E_n = 16$ keV et $\Delta E_n = 100$ keV pour 4,5 MeV $\leq E_n \leq 10$ MeV ;

Les fonctions de réponse ont été calculées en utilisant le code MCNPX (voir chapitre 3). Pour chaque compteur, les spectres de protons de recul ont été calculés. Pour le compteur SP2-1, par exemple, il a fallu réaliser 297 calculs (soit 297 énergies de neutrons monocinétiques pour construire la matrice de réponse. Le même travail est accompli pour les trois autres compteurs. Une fois les spectres de protons de recul déterminés, une routine est mise en oeuvre pour traiter ces données et générer les matrices de réponse selon le format bien particulier exigé par le code MAXED.

Le fichier est nommé avec une extension ".rsp" afin qu'il soit lu correctement par MAXED.

4.4 Intercomparaison SPEC4/MAXED

4.4.1 Démarche suivie

L'objectif est de comparer les performances de déconvolution de SPEC4 et de MAXED : nous avons choisi de travailler avec les données des compteurs SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6 dans le cadre des mesures effectuées lors de la campagne d'inter-comparaison de mars 2003 (cf. chapitre 2). Les spectres ISO calculés pour les canaux d'énergie propres aux détecteurs du ROSPEC vont servir ici de référence pour la comparaison.

Pour chaque champ neutronique étudié, nous disposons des données mesurées individuellement par chaque compteur. Ce sont les distributions d'impulsions des protons de recul que nous allons déconvoluer d'une part en utilisant SPEC4 et d'autre part en les transformant au format voulu et les déconvoluant avec MAXED.

Nous allons donc procéder à une étude comparative systématique sur l'ensemble des données spectrales dont nous disposons pour les quatre détecteurs.

4.4.2 Déconvolution des données spectrales avec SPEC4

Lors de la déconvolution des données du ROSPEC, le code SPEC4 génère des fichiers intermédiaires. Comme, nous l'avons vu précédemment, le code déconvolue les distributions d'impulsions en partant du compteur SP6 en terminant par le compteur SP2-1. Il fait ensuite appel à une sous-routine pour "fusionner les spectres" dans les régions de recouvrement. Avant de procéder à cette tâche, SPEC4 génère un fichier contenant les spectres propres à chaque détecteur. C'est ce fichier que nous allons utiliser pour la comparaison avec MAXED.

Finalement, cette partie nécessite seulement d'exécuter SPEC4 et de récupérer les données voulues. Ce sont au total 16 spectres déconvolués qui sont obtenus, soit un spectre par détecteur (pour rappel : SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6) et par champ neutronique (à savoir, AmBe,californium nue et modérée par D_2O, avec ou sans écran de cadmium).

4.4.3 Déconvolution des données spectrales avec MAXED

4.4.3.1 Utilisation d'un spectre par défaut pré-calculé

L'utilisateur a la possibilité d'inclure des informations *a priori via* le spectre par défaut. Disposant du code MCNPX, nous avons calculé le spectre énergétique de fluence neutron à 75 cm. Ce spectre est utilisé comme spectre par défaut dans UMG.

La difficulté de l'utilisation de MAXED réside dans la détermination du facteur χ^2 adapté au problème. Il existe une méthode empirique permettant d'estimer ce facteur. Elle consiste à utiliser le code GRAVEL (lui-même basé sur le code SAND-II [105]). Nous exécutons GRAVEL avec nos données en choisissant un nombre important d'itérations (disons 1000). Au fur et à mesure des itérations, le facteur χ^2 va varier et atteindre rapidement une valeur limite. A partir de cette valeur, il va avoir tendance à diminuer très lentement. Nous notons alors cette valeur limite que nous réinjectons dans le code GRAVEL. Lors d'une seconde exécution de ce dernier, nous vérifions qu'il n'y ait pas d'oscillations non-physiques dans le spectre déconvolué. Si ce n'est pas le cas, nous augmentons de proche en proche χ^2 jusqu'à faire "disparaître" les oscillations du spectre solution. Cela fait, nous notons la valeur du χ^2 finale que nous utilisons alors pour MAXED.

Une fois que la construction des fichiers d'entrée est terminée, nous accomplissons la déconvolution des données spectrales avec MAXED et nous obtenons 16 spectres déconvolués.

4.4.3.2 Utilisation d'un spectre par défaut plat

Dans l'optique d'influencer au minimum le résultat final de la déconvolution avec MAXED, nous avons opté pour un spectre par défaut plat. Il constitue le point de départ des itérations pour la recherche d'une solution maximisant l'entropie du système. Dans la pratique, il suffit de modifier le fichier correspondant au spectre par défaut. Toutefois, il faut penser également à refaire le travail d'estimation du paramètre χ^2. Ce paramètre dépend de la qualité des données mesurées mais également des informations contenues dans le spectre par défaut [113].

4.4.4 Résultats

4.4.4.1 Californium nue

Par souci de clarté, les résultats sont présentés détecteur par détecteur, en commençant par le détecteur SP2-1 et en terminant par le détecteur SP6.

Pour le compteur SP2-1 avec un champ de californium nue, la figure 4.6 montre :

- le spectre ISO calculé pour les canaux du compteur SP2-1 (en rouge) ;
- le spectre déconvolué avec MAXED en utilisant un spectre par défaut plat (en bleu) ;
- le spectre déconvolué avec MAXED en utilisant un spectre par défaut calculé (en noir) ;
- le spectre déconvolué avec le code ZSPEC4 (en rose).

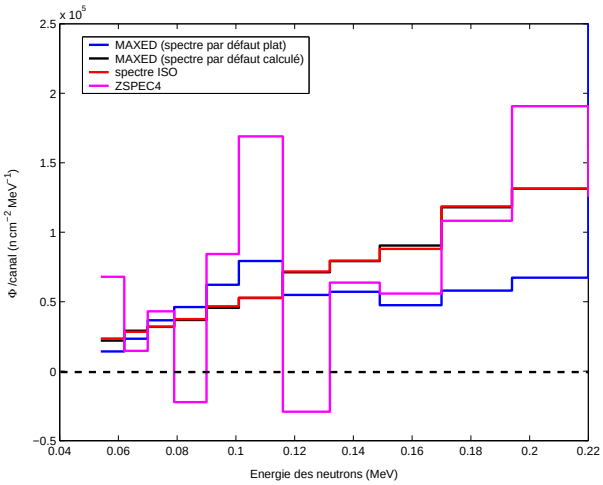


Fig. 4.6 – Compteur SP2-1 avec Cf nue : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Les 3 méthodes de déconvolution testées donnent des résultats assez différents. ZSPEC4 donne un spectre déconvolué éloigné du spectre attendu, d'autant plus que nous observons deux valeurs de fluence négatives donc non physiques. Cela peut être expliqué par la faible statistique de comptage des neutrons dans cette région d'énergie, ce qui se traduit par des incertitudes importantes. La propagation des erreurs dans ZSPEC4 expliquerait probablement alors l'apparition de résultats négatifs.

MAXED donne deux spectres différents selon la forme du spectre par défaut. En effet, dans le cas où le spectre par défaut est plat, nous obtenons un spectre déconvolué

certes toujours positif mais qui s'éloigne du spectre attendu au-delà de 110 keV environ. Par contre, utilisé avec un spectre par défaut pré-calculé, MAXED permet d'obtenir un résultat très proche du spectre attendu.

La figure 4.7 montre les résultats pour le détecteur SP2-4.

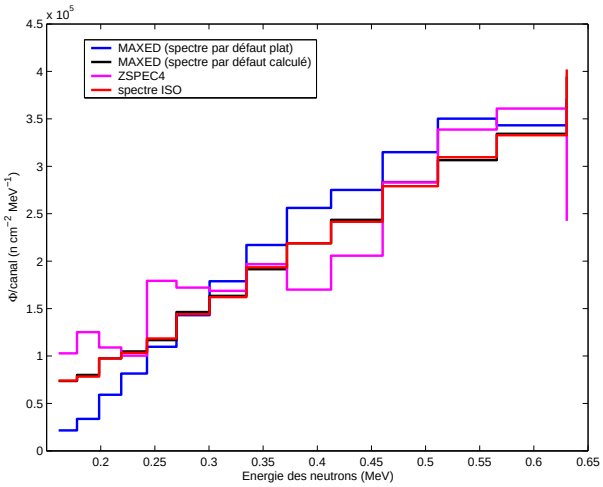


Fig. 4.7 – Compteur SP2-4 avec Cf nue : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Le spectre obtenu par ZSPEC4 semble toujours être le plus éloigné du résultat attendu bien que la différence soit moins notable que dans le cas du détecteur SP2-1. MAXED donne de meilleurs résultats et nous observons que c'est encore dans la situation où nous introduisons un spectre par défaut calculé dans le code que la déconvolution est la plus performante.

Passons au détecteur SP2-10 (figure 4.8).

Globalement, les 3 spectres déconvolués sont en assez bonne corrélation avec le spectre attendu. Cela peut s'expliquer par une meilleure statistique de comptage dans ce domaine d'énergie pour la source de californium. Autrement dit, les mesures sont de meilleure qualité et les erreurs sont moins importantes. Nous observons néanmoins que c'est toujours la méthode "MAXED + spectre par défaut calculé" qui donne les meilleurs résultats et que le code ZSPEC4 donne un spectre déconvolué plus irrégulier et moins proche de la référence. L'utilisation du spectre par défaut plat avec MAXED donne de meilleurs résultats que ZSPEC4.

Terminons par le détecteur SP6 (figure 4.9) : les deux spectres obtenus avec MAXED reproduisent mal la référence entre 1 et 1,8 MeV : les valeurs de fluence prédites sont plus

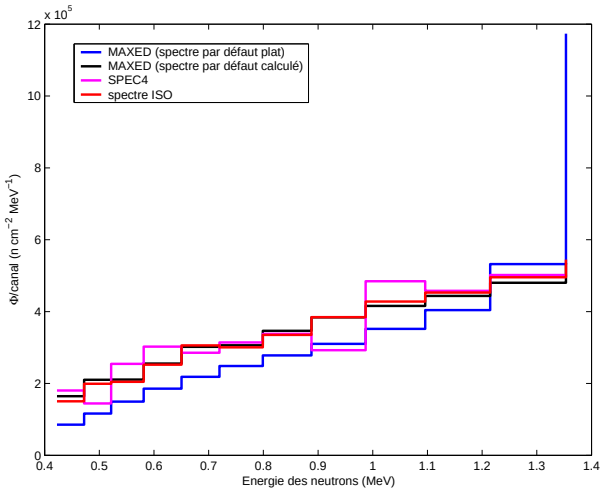


Fig. 4.8 – Compteur SP2-10 avec Cf nue : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

faibles que les valeurs attendues. Au-delà de 1,8 MeV, ils sont proches de la référence. Le spectre déconvolué avec ZSPEC4 est en bonne corrélation avec le spectre référence.

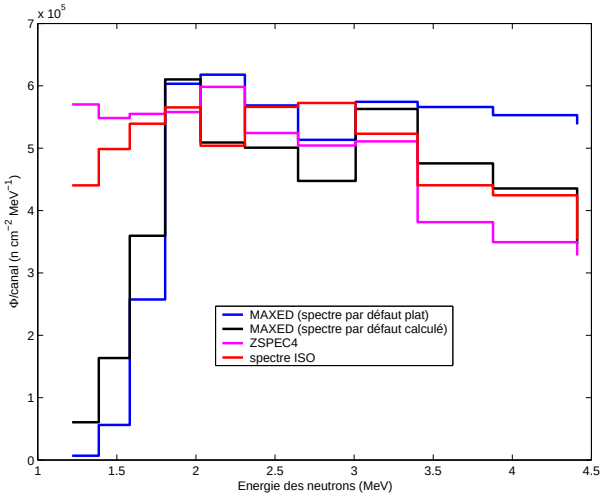


Fig. 4.9 – Compteur SP6 avec Cf nue : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

4.4.4.2 Californium modérée par D_2O

Nous avons choisi de tester MAXED avec la source de californium modérée avec D_2O bien qu'il ne s'agisse pas d'un champ neutronique de référence. Le spectre ervant "d'étalon" est le spectre de la source calculé au point test (à 75 cm du centre géométrique de la

source).

La figure 4.10 présente les résultats pour le détecteur SP2-1.

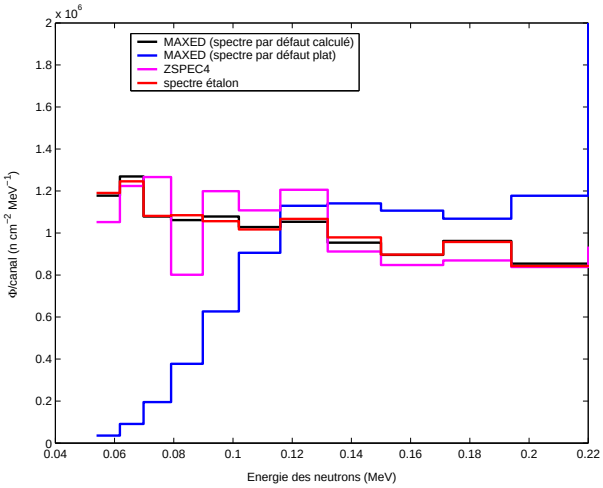


Fig. 4.10 – Compteur SP2-1 avec Cf modérée par D_2O : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre étalon

Le code ZSPEC4 donne un assez bon résultat : le spectre déconvolué est relativement proche du spectre attendu. En ce qui concerne MAXED, les spectres déconvolués selon la méthode “spectre par défaut plat” et “spectre par défaut calculé” sont très différents. Lorsqu'un spectre plat est utilisé comme information *a priori*, le spectre solution obtenu par MAXED est très éloigné du spectre attendu en particulier pour $E_n < 120$ keV. Dans le cas où c'est un spectre calculé qui est utilisé, les résultats sont satisfaisants.

Les résultats de déconvolution pour le détecteur SP2-4 sont donnés figure 4.11.

Les mêmes remarques peuvent être faites que dans le cas précédent. C'est la méthode “MAXED avec spectre par défaut calculé” qui donne les meilleurs résultats.

La figure 4.12 donne les résultats pour le détecteur SP2-10.

La déconvolution avec MAXED utilisé avec un spectre par défaut plat et par SPEC4, donne des résultats qui ne corrèlent pas avec le spectre attendu. Nous observons que c'est seulement lorsque MAXED est utilisé avec un spectre par défaut calculé, que les résultats sont satisfaisants.

Les résultats de la déconvolution pour le détecteur SP6 sont montrés dans la figure

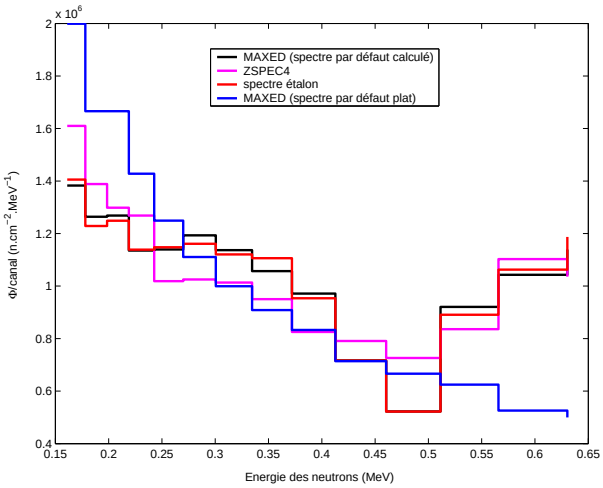


Fig. 4.11 – Compteur SP2-4 avec Cf modérée par D_2O : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre étalon

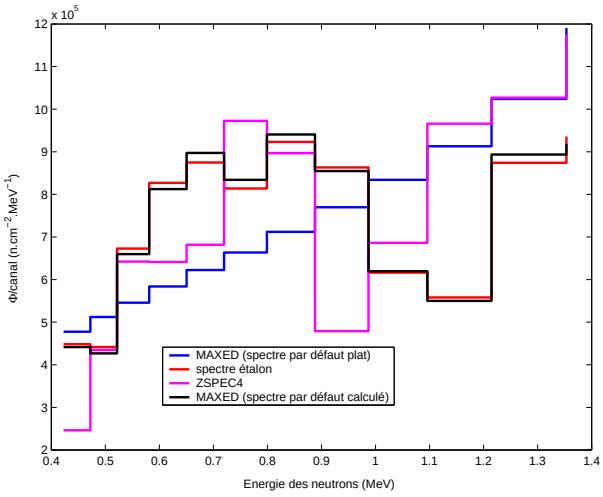


Fig. 4.12 – Compteur SP2-10 avec Cf modérée par D_2O : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre étalon

4.13.

Nous observons que les résultats pour ZSPEC4 et pour MAXED utilisé avec un spectre par défaut plat sont éloignés du spectre attendu, ce qui n'est pas le cas lorsque la déconvolution est faite avec MAXED utilisé avec un spectre par défaut calculé.

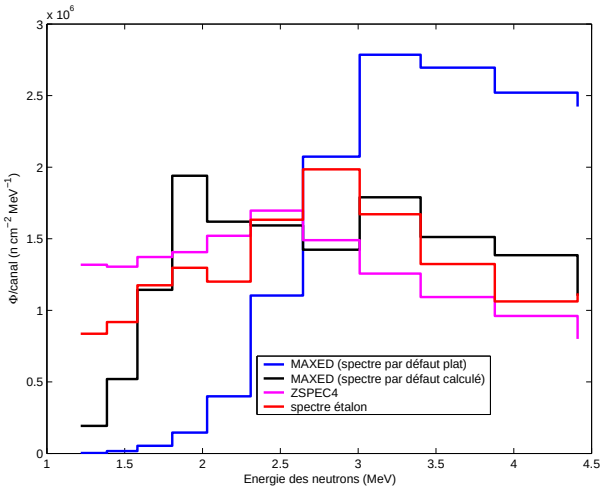


Fig. 4.13 – Compteur SP6 avec Cf modérée par D_2O : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre étalon

4.4.4.3 Californium modérée par D_2O avec un écran de cadmium

Nous continuons l'étude comparative de MAXED et ZSPEC4 avec le champ neutronique de référence : californium modérée par D_2O avec écran de cadmium.

La figure 4.14 présente les résultats pour le détecteur SP2-1.

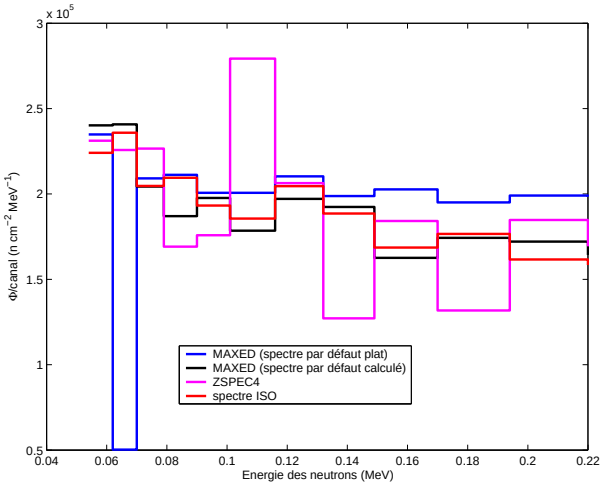


Fig. 4.14 – Compteur SP2-1 avec Cf modérée par D_2O avec écran de cadmium : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Le spectre déconvolué avec ZSPEC4 suit approximativement l'allure du spectre at-

tendu. Le spectre déconvolué avec MAXED, utilisé avec un spectre par défaut plat, présente un creux très prononcé à 65 keV et surestime le spectre de référence au-delà de cette valeur d'énergie. Utilisé avec un spectre par défaut calculé, MAXED permet d'obtenir un spectre déconvolué proche du spectre ISO.

La figure 4.15 présente les résultats pour le détecteur SP2-4.

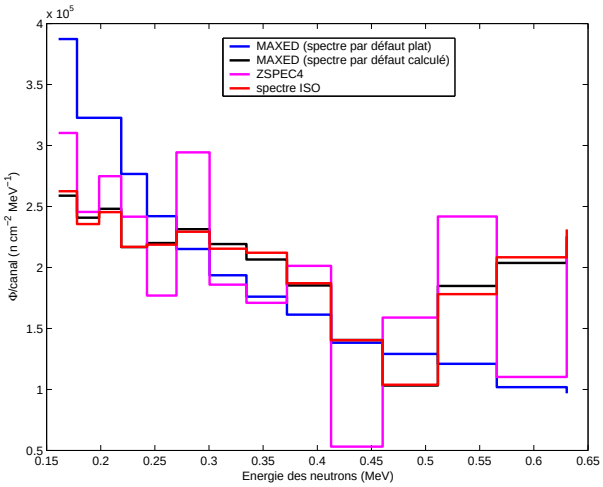


Fig. 4.15 – Compteur SP2-4 avec Cf modérée par D_2O avec écran de cadmium : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Nous observons que le spectre déconvolué grâce à ZSPEC4 suit globalement l'allure générale du spectre attendu mais, il est décalé par rapport à ce dernier vers la partie haute énergie du spectre. Le spectre déconvolué obtenu avec MAXED, lorsque ce code est utilisé avec un spectre par défaut plat (courbe bleue), présente une allure monotone décroissante et reproduit mal le spectre de référence. Lorsque MAXED est utilisé avec un spectre par défaut calculé (en noir), il permet d'obtenir un résultat corrélant de façon satisfaisante le spectre ISO. En particulier, il restitue correctement la position du "creux" correspondant à la résonance de ^{16}O à environ 500 keV.

Pour le SP2-10 (figure 4.16), nous remarquons que le spectre déconvolué par SPEC4 présente le même décallage que dans le cas du détecteur SP2-4. Le spectre obtenu avec MAXED, en mode "spectre par défaut plat" (en bleu), surestime le spectre attendu entre 400 et 500 keV puis le sous-estime dans le reste de la plage énergétique. MAXED, utilisé avec un spectre par défaut calculé, donne un spectre déconvolué très proche du spectre attendu. Nous notons qu'il restitue de façon correcte la position du "creux" correspondant à la seconde résonance de ^{16}O à environ 1 MeV.

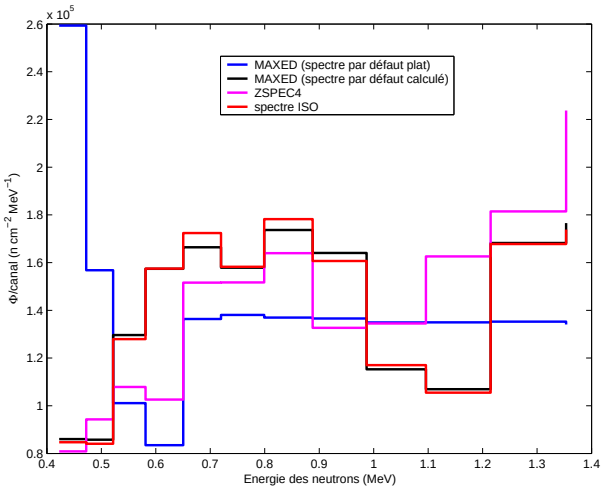


Fig. 4.16 – Compteur SP2-10 avec Cf modérée par D_2O avec écran de cadmium : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Les résultats pour le détecteur SP6 sont présentés dans la figure 4.17.

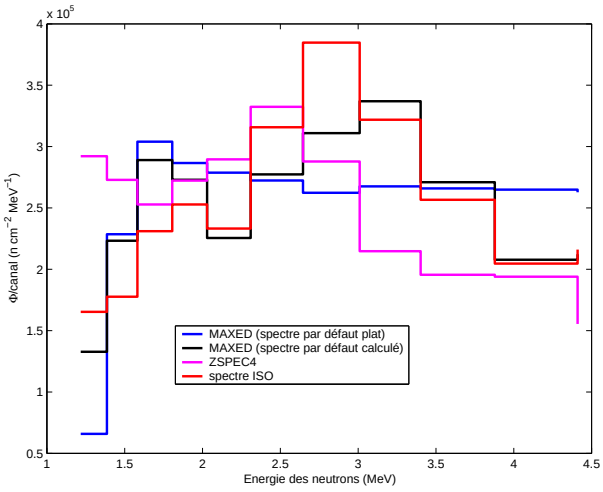


Fig. 4.17 – Compteur SP6 avec Cf modérée par D_2O avec écran de cadmium : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

ZSPEC4 et MAXED en mode “spectre par défaut plat” donnent des spectres assez éloignés du spectre attendu. Par contre, le spectre déconvolué avec MAXED en mode “spectre par défaut calculé” est en bonne corrélation avec le spectre ISO. Nous noterons néanmoins que cette corrélation est moins bonne que dans les cas étudiés précédemment.

4.4.4.4 AmBe avec 1 mm de Pb

Les résultats de déconvolution des données spectrales du détecteur SP2-1 avec un champ neutronique ISO d'AmBe sont présentés dans la figure 4.18.

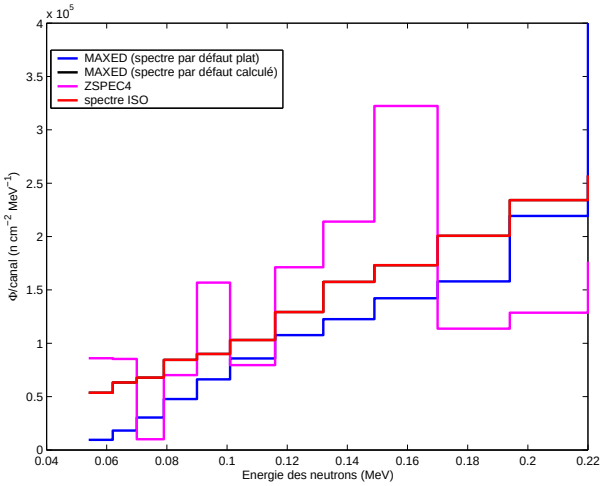


Fig. 4.18 – Compteur SP2-1 avec AmBe : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

Le spectre déconvolué avec ZSPEC4 restitue mal le spectre de référence dans cette plage d'énergie. Le code MAXED en mode "spectre par défaut plat" fournit un spectre déconvolué en dessous du spectre attendu et surestimant la valeur de la fluence dans le dernier canal. Le spectre déconvolué par MAXED en mode "spectre par défaut calculé" est confondu totalement avec le spectre attendu.

Les spectres obtenus par déconvolution des données spectrales du détecteur SP2-4 sont présentés sur la figure 4.19. Comme nous pouvons le voir, seul MAXED, utilisé avec un spectre par défaut pré-calculé, donne de bons résultats. ZSPEC4 et MAXED avec spectre plat donnent des spectres déconvolués qui restituent très mal le spectre attendu.

La figure 4.20 présente les spectres déconvolués à partir des données spectrales du détecteur SP2-10. Nous notons que tous les spectres déconvolués approchent de façon satisfaisante le spectre ISO mais que c'est toujours avec MAXED utilisé avec un spectre par défaut calculé qui approche mieux avec ce dernier.

La figure 4.21 donne les résultats de déconvolution pour le détecteur SP6. Nous observons une très bonne corrélation entre le spectre ISO, le spectre déconvolué par ZSPEC4 et le spectre déconvolué par MAXED en mode "spectre par défaut calculé". Nous relevons

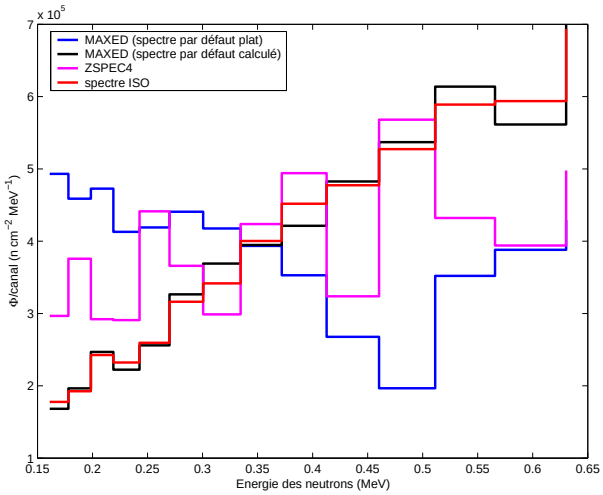


Fig. 4.19 – Compteur SP2-4 avec AmBe : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

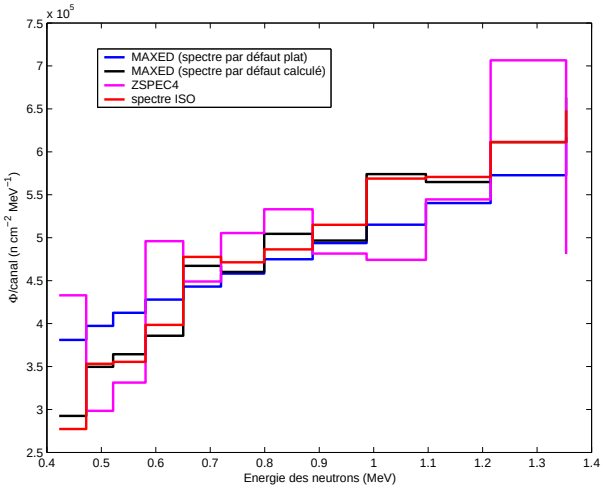


Fig. 4.20 – Compteur SP2-10 avec AmBe : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

un problème avec le spectre déconvolué par MAXED en mode “spectre par défaut plat” qui est incompatible avec le spectre attendu (sous-estimation en dessous de 2,5 MeV et surestimation très importante au-delà de cette énergie).

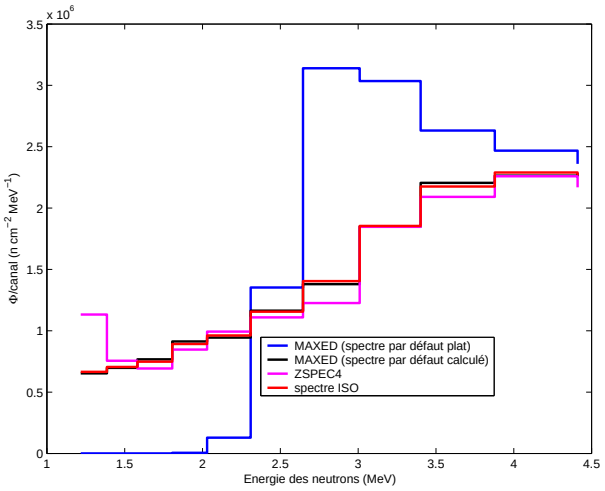


Fig. 4.21 – Compteur SP6 avec AmBe : comparaison des spectres obtenus par les codes MAXED (avec spectre par défaut plat ou calculé) et ZSPEC4 avec le spectre de référence

4.5 Bilan

Les tests effectués avec les codes étudiés ont été réalisés avec des données spectrales provenant de mesures sur des champs neutroniques bien connus afin d'avoir une référence fiable pour l'intercomparaison ZSPEC4/MAXED.

Les résultats se sont révélés différents selon le champ neutronique utilisé et le détecteur (et donc la plage d'énergie considérée) dont les données spectrales sont déconvoluées. Toutefois, nous pouvons résumer les enseignements tirés de l'intercomparaison en quelques points essentiels :

1. les performances du code ZSPEC4 (fourni initialement avec le ROSPEC) varient selon le détecteur étudié mais semble dépendre également de la statistique de comptage des données à déconvoluer. En effet, ZSPEC4 rencontre des problèmes mathématiques lorsque la statistique de comptage est faible. Ceci est vrai lorsque nous considérons le cas du détecteur SP2-1 utilisé avec les champs neutroniques des sources ^{252}Cf nue et AmBe (figures 4.6 et 4.18). Dans le domaine d'énergie couvert par le SP2-1, de 50 keV à 250 keV, le nombre de neutrons émis par les sources pré-citées est faible. Lorsque la statique de comptage est plus importante, nous observons que les performances de ce code sont assez satisfaisantes ;
2. les essais avec MAXED, utilisant un spectre par défaut plat, sont dans l'ensemble peu concluants. En effet, dans 9 cas étudiés, le spectre déconvolué est éloigné du résultat attendu. Dans les autres cas, le spectre obtenu s'en approche mais en restitue mal la structure fine. Ces observations peuvent être expliquées de deux manières.

D'une part, le code MAXED n'aurait pas assez d'informations *a priori* pour mener à bien les itérations et converger vers un spectre solution correct. D'autre part, l'utilisation d'un spectre plat ne serait pas finalement adaptée à la problématique traitée, dans le sens où entrer un spectre plat au début de l'itération ne signifie pas forcément que l'utilisateur "injecte" une information neutre. En effet, au fur et à mesure des itérations, le code de calcul va tendre vers la solution la plus "plate" (au sens structurel) possible, ce qui n'est pas l'objectif de la déconvolution ;

3. MAXED, utilisé avec un spectre par défaut pré-calculé, donne de très bons résultats sauf pour le détecteur SP6. Pour ce dernier, les spectres obtenus restituent approximativement les spectres attendus (figures 4.9, 4.13 et 4.17), exception faite du cas de AmBe, où la corrélation est excellente. Globalement, il semble donc que le code arrive à converger rapidement (en général après 10 à 15 itérations) vers un spectre solution satisfaisant. En d'autres termes, il dispose suffisamment d'informations *a priori* pour arriver au bon résultat.

Finalement, il apparait que le code ZSPEC4 ne donne de bons résultats que si la qualité statistique du comptage est satisfaisante. Les performances de MAXED apparaissent tributaires de la qualité des informations *a priori*. Dans la mesure où l'objectif de la déconvolution est d'obtenir un spectre neutronique correct dans l'absolu, en partant seulement de la connaissance des distributions d'impulsions des protons de recul et des caractéristiques des détecteurs (fonctions et matrices de réponse), la méthode d'entropie maximum impose la nécéssité d'introduire une contrainte par le biais du spectre par défaut, ce qui complique quelque peu la tâche fixée. Nous avons vu que l'introduction d'un spectre par défaut plat ne résolvait pas totalement le problème. D'autre part, l'introduction d'un spectre par défaut calculé dans les conditions initiales permet d'obtenir de bons résultats mais la solution ainsi obtenue ne peut être considérée indépendante des informations *a priori*.

Il apparaît donc nécessaire de concevoir une méthode différente pour l'optimisation de la déconvolution *via* le code MAXED. Les études précédentes ont mis en exergue l'importance de l'information *a priori*. Nous avons choisi deux manières différentes de déconvoluer les données spectrales. Nous allons les expliciter par la suite.

4.6 Optimisation de l'utilisation du code MAXED

4.6.1 Amélioration du calcul des matrices de réponse

Comme nous avons pu le voir précédemment, la connaissance des matrices de réponse des détecteurs est primordiale pour réaliser une déconvolution de leurs données mesurées. Le pas choisi dans le découpage énergétique (le nombre d'énergies monocinétiques pour lesquelles les fonctions de réponse associées sont déterminées) doit être suffisamment petit pour garantir un bonne précision de la matrice réponse tout en limitant le temps de calcul nécessaire dans des limites raisonnables. La matrice de réponse d'un détecteur donné doit être calculé dans un domaine d'énergie de neutrons le plus large possible. Prenons l'exemple du compteur SP2-1 dont le domaine de détection par défaut varie de 50 keV à 250 keV. Or SP2-1 peut être utilisé dans des conditions telles que les neutrons d'énergies supérieures à 250 keV peuvent perturber les signaux qu'il collecte. C'est le phénomène de *downscattering* que nous avons mentionné dans le chapitre 3. Ceci est valable pour les quatre détecteurs sur lesquels porte l'étude. Il est donc fondamental d'étendre le domaine de calcul des matrices de réponse jusqu'à la valeur correpondant à l'énergie maximale des neutrons émis par les sources c'est-à-dire, typiquement jusqu'à 10 MeV.

4.6.2 Détermination des matrices de réponse pour les détecteurs des autres ROSPEC

4.6.2.1 Méthode employée

L'ensemble du travail de déconvolution a été réalisé avec les données spectrales d'un seul appareil ROSPEC sont les compteurs ont leurs propres caractéristiques (régions d'intérêt, étalonnage énergétique). Cet aspect est très important, puisque pour un autre appareil aux caractéristiques différentes, les processus numériques de déconvolution sont forcément différents (étalonnage et régions d'intérêt différents donc des matrices de réponses caractéristiques différentes).

Pour un ROSPEC donné, quatre matrices de réponses doivent être calculées. Si nous prenons en compte les trois ROSPEC sur lesquels portent l'étude, cela signifie qu'il faut déterminer 12 matrices de réponse. Une matrice de réponse, telle que nous l'avons définie précédemment, nécessite environ 4 mois de temps de calcul : il est donc évident que la

mise en place d'une méthode alternative de détermination est indispensable.

Pour illustrer notre propos, nous allons prendre l'exemple du détecteur SP2-1. Ses caractéristiques obtenues après étalonnage (droites d'étalonnage et régions d'intérêt, cf. chapitre 2) sont présentées dans le tableau 4.1 :

SP2-1	Droite d'étalonnage E_p = CAL*(N-BBIAS)	Région d'intérêt [Ninf Nsup]
ROSPEC 1	E_p = 0,00133*(N-16)	[52 198]
ROSPEC 2	E_p = 0,00131*(N-20,7)	[62 201]

Tab. 4.1 – Caractéristiques du détecteur SP2-1 pour deux ROSPEC différents

Si nous visualisons les droites d'étalonnage des deux SP2-1 (figure 4.22), nous remarquons qu'elle sont très proches :

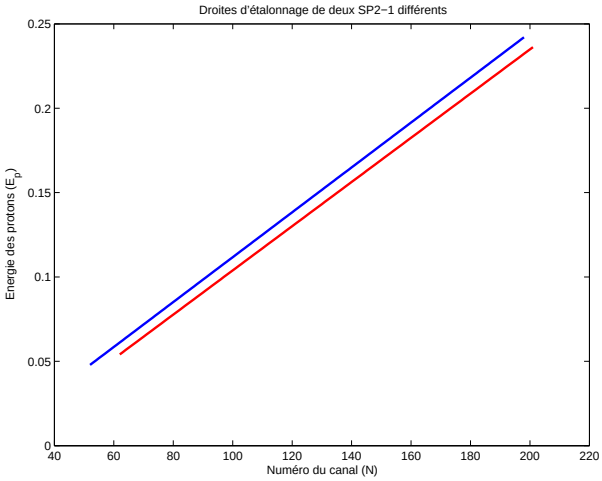


Fig. 4.22 – Droites d'étalonnages de deux SP2-1 différents

La matrice de réponse du compteur SP2-1 du ROSPEC 1 a été calculée. Partant du constat selon lequel les caractéristiques énergétiques du deuxième compteur SP2-1 (correspondant au ROSPEC 2) sont très proches, nous allons déduire sa matrice de réponse de celle du premier SP2-1 en utilisant l'extrapolation linéaire.

La matrice de réponse est une juxtaposition de fonctions de réponses pour plusieurs énergies de neutron monocinétiques (figure 4.4). Nous allons illustrer notre méthode d'extrapolation linéaire pour le calcul d'une fonction de réponse pour une énergie de neutron monocinétique E_m donnée. Soit $\mathbf{F}_1 = (\mathrm{F}^1_{m,52}\ \mathrm{F}^1_{m,53}\ \ldots\ \mathrm{F}^1_{m,N}\ \ldots\ \mathrm{F}^1_{m,197}\ \mathrm{F}^1_{m,198}$, N : numéro du canal protons variant de 52 à 198), la fonction de réponse du premier SP2-1 pour une énergie de neutrons E_m. Celle-ci est connue. De la même façon, notons $\mathbf{F}_2 = (\mathrm{F}^2_{m,62}\ \mathrm{F}^2_{m,63}\ \ldots\ \mathrm{F}^2_{m,N'}\ \ldots\ \mathrm{F}^2_{m,200}\ \mathrm{F}^2_{m,201}$, N' : numéro du canal protons variant de 62 à 201), la fonction

de réponse du second SP2-1 pour une énergie de neutron E_m. L'extrapolation de $\mathbf{F}_2$ à partir de $\mathbf{F}_1$ nécessite deux étapes :

- $F^2_{m,62}$ correspond à la valeur du premier élément du vecteur fonction de réponse $\mathbf{F}_2$, c'est-à-dire le nombre d'impulsions déposées dans le premier canal proton d'énergie E_0= E(N'=62) = 0,00131*(62-16)=0,06026 MeV. Dans la droite d'étalonnage du premier SP2-1, l'algorithme va chercher les canaux d'énergie proton les plus proches de E_0 : ici ce sont les énergies des canaux $N = 60$ et $N = 61$ qui encadrent E_0. En effet $E(N = 60)$=0,059767 MeV $< E_0 < E(N = 61)$=0,061088 MeV. Ce sont donc les valeurs $F^1(m, 60)$ et $F^1(m, 61)$ qui vont être utilisées pour calculer $F^2_{m,62}$ par extrapolation linéaire comme suit (figure 4.23) :

$$F^2(m,62) = \frac{F^1(m,61) - F^1(m,60)}{E(N=61) - E(N=60)} * E(N'=62) + \Big\{ F^1(m,60) - E(N=60) * \Big(\frac{F^1(m,61) - F^1(m,60)}{E(N=61) - E(N=60)} \Big) \Big\} \tag{4.43}$$

- $F^2_{m,63}$ correspond à la valeur du second élément du vecteur fonction de réponse $\mathbf{F}_2$, c'est-à-dire le nombre d'impulsions déposés dans le deuxième canal proton d'énergie E_1= $E(N' = 63)$ = 0,00131*(63-16)=0,06157 MeV. Dans la droite d'étalonnage du premier SP2-1, l'algorithme va chercher les canaux d'énergie proton les plus proches de E_1 : ici ce sont les énergies des canaux $N = 61$ et $N = 62$ qui encadrent E_1. En effet, $E(N = 61)$=0,061088 MeV $< E_1 < E(N = 62)$=0,062409 MeV. Ce sont donc les valeurs $F^1(m, 61)$ et $F^1(m, 62)$ qui vont être utilisées pour calculer $F^2_{m,63}$ par extrapolation linéaire comme suit :

$$F^2(m,63) = \frac{F^1(m,62) - F^1(m,61)}{E(N=62) - E(N=61)} * E(N'=63) + \Big\{ F^1(m,61) - E(N=61) * \Big(\frac{F^1(m,62) - F^1(m,61)}{E(N=62) - E(N=61)} \Big) \Big\} \tag{4.44}$$

- et ainsi de suite jusqu'à la valeur $F^2_{m,201}$.

Cette méthode est appliquée à toutes les fonctions de réponse afin de remonter à la matrice de réponse du deuxième compteur SP2-1 recherchée.

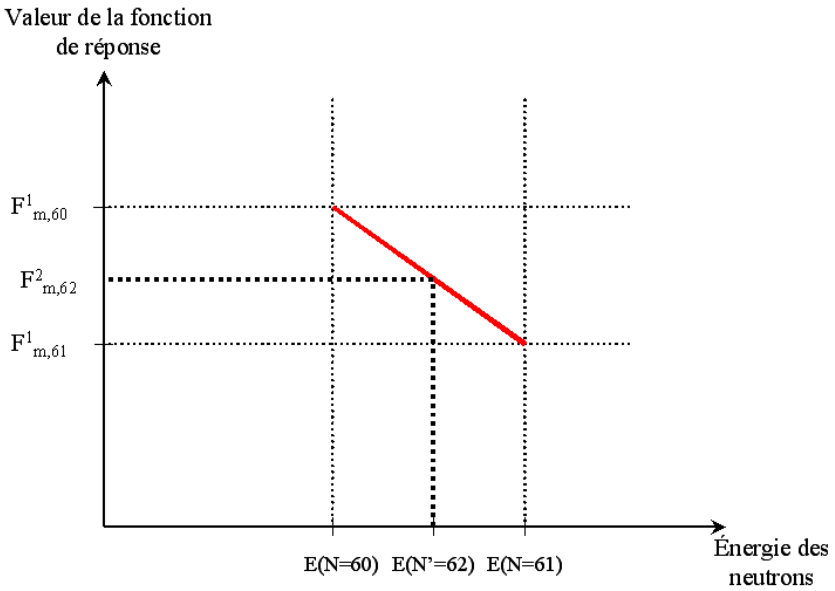
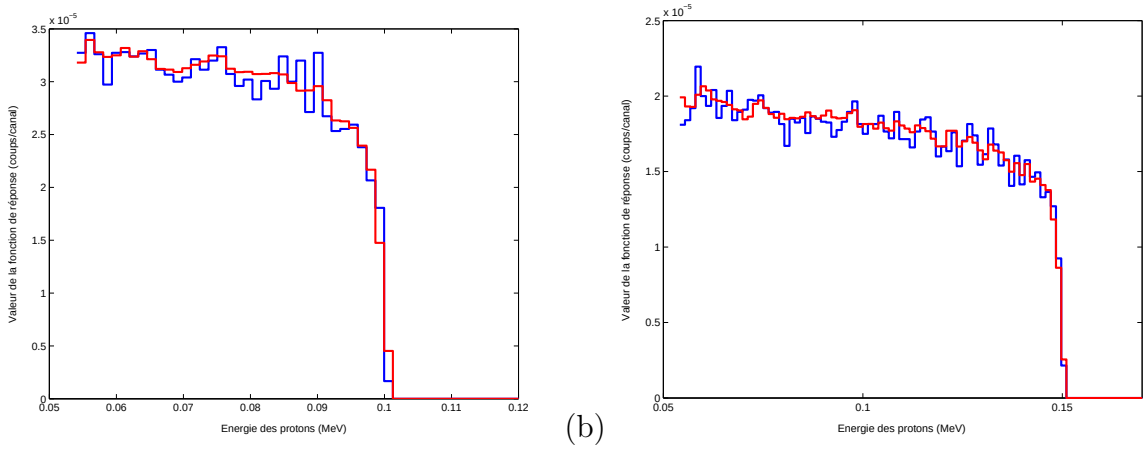


Fig. 4.23 – Déduction de la valeur de la fonction de réponse inconnue $F^2_{m,62}$ par extrapolation linéaire

Nous réalisons le même type de calcul pour retrouver les matrices de réponses pour les détecteurs SP2-4, SP2-10 et SP6 des autres ROSPEC.

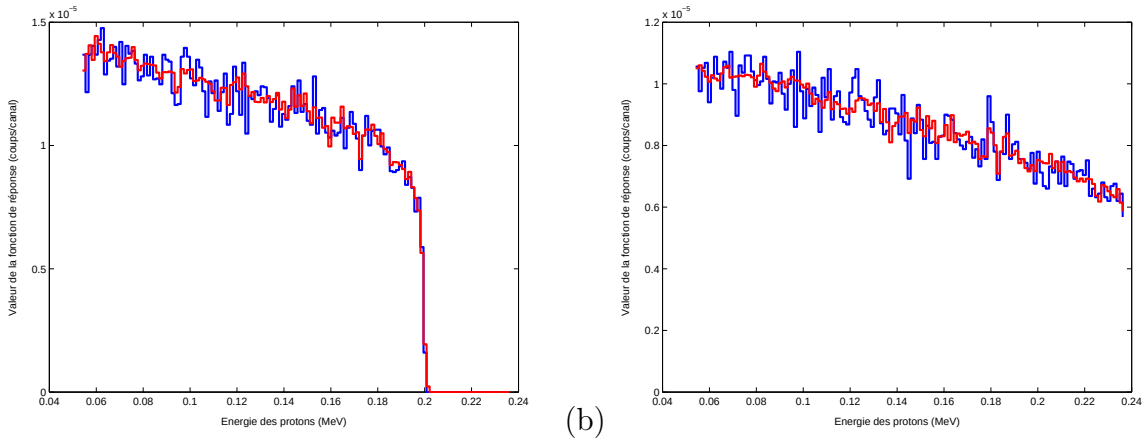
4.6.2.2 Validation des calculs

Afin de valider cette méthode, nous avons utilisé MCNPX pour déterminer quelques fonctions de réponse du deuxième compteur SP2-1. Elles sont comparées à celles obtenues *via* la méthode d'extrapolation décrite précédemment pour quatre énergies de neutrons, à savoir 100 keV et 150 keV d'une part (figure 4.24) et 200 keV et 250 keV d'autre part (figure 4.25).


x 10^-5
Valeur de la fonction de réponse (coups/canal)
Energie des protons (MeV)
x 10^-5
Valeur de la fonction de réponse (coups/canal)
Energie des protons (MeV)

(a) (b)

Fig. 4.24 – Fonctions de réponses extrapolées (en rouge) et calculées par MCNPX (en bleu) du compteur SP2-1 pour des neutrons monocinétiques de 0,100 MeV (a) et de 0,150 MeV (b)


x 10^-5
Valeur de la fonction de réponse (coups/canal)
Energie des protons (MeV)
x 10^-5
Valeur de la fonction de réponse (coups/canal)
Energie des protons (MeV)

(a) (b)

Fig. 4.25 – Fonctions de réponses extrapolées (en rouge) et calculées par MCNPX (en bleu) du compteur SP2-1 pour des neutrons monocinétiques de 0,200 MeV (a) et de 0,250 MeV (b)

Les fonctions de réponses obtenues par notre méthode sont en excellent accord avec les fonctions de réponses calculées par MCNPX, pour les quatre énergies de neutrons.

Des calculs sur des énergies supplémentaires ont permis de confimer ces résultats, ce qui valide notre démarche.

4.6.3 Importance du spectre de départ dans la déconvolution

L'analyse des résultats des premiers tests du code de déconvolution MAXED a fait ressortir l'importance de l'information *a priori*. Les études comparatives entre SPEC4 et MAXED ont montré qu'il était nécessaire de faire un travail plus approfondi pour rechercher le spectre de départ optimal afin d'accomplir une déconvolution performante des données spectrales des différents détecteurs.

4.6.3.1 Utilisation le spectre obtenu par SPEC4 comme spectre de départ

Lorsque l'expérimentateur utilise le ROSPEC pour faire des mesures en champ neutronique, il dispose d'un certain nombre d'informations en fin d'irradiation. Parmi ces informations, il y a le spectre d'impulsions dans chaque compteur (ce sont donc des données brutes non traitées) mais également les spectres déconvolués par l'appareil *via* le code SPEC4.

Pour améliorer la qualité de l'information *a priori*, l'idée va consister à "injecter" le spectre résultat de SPEC4 comme spectre de départ dans le processus de déconvolution du code MAXED. En effet, ce spectre contient des informations supplémentaires (structure spectrale globale, résonances éventuelles...) qui font défaut au spectre "plat".

4.6.3.2 Utilisation spectre "plat" modifié structurellement

Une autre piste pour améliorer l'information de départ entrée de MAXED a été abordée suite à plusieurs contacts que nous avons eu avec le Dr. Reginatto et son équipe [131] [135]. En effet, M. Reginatto estime qu'un spectre de départ peut dans certains cas suffire pour réaliser une déconvolution correcte. Néanmoins, dans la plupart des cas, il vaut mieux déconvoluer en utilisant une bonne estimation du spectre attendu contenant des informations supplémentaires, en particulier des informations ayant trait à la physique des neutrons.

Nous allons réaliser la modification du spectre "plat" en y ajoutant les informations

structurelles les plus importantes (spectre croissant ou décroissant, présence de résonances...). Cette modification se fera au cas par cas. Nous appelerons ce spectre de départ "spectre plat modifié" par la suite.

4.6.4 Résultats

L'analyse comparative de la déconvolution entre SPEC4 et MAXED est réalisée selon les mêmes modalités que dans la partie 4.4.4. Les résultats sont présentés compteur par compteur avec les champs neutroniques suivants :

- Californium nue ;
- Californium modérée avec D_2O ;
- AmBe avec 1 mm Pb.

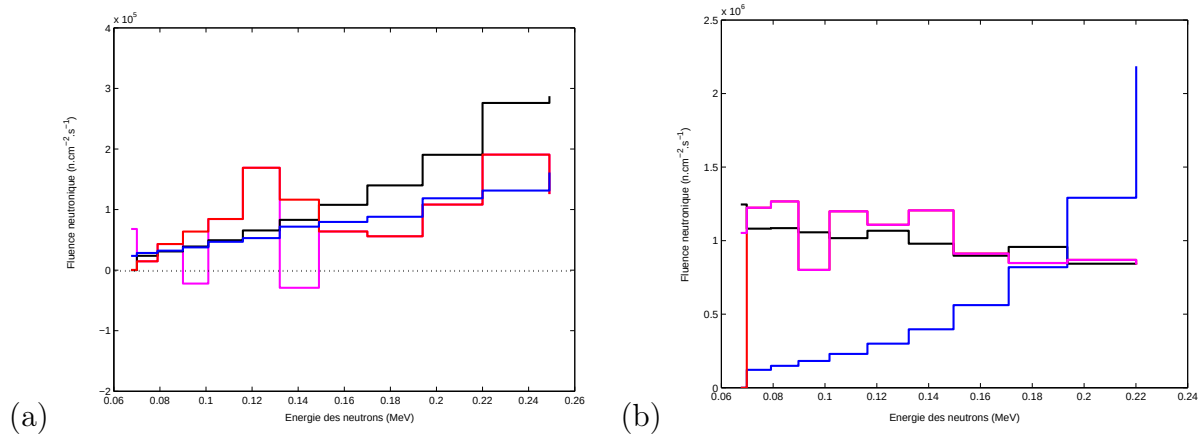
4.6.4.1 Détecteur SP2-1

Nous avons réalisé la déconvolution des données spectrales du compteur SP2-1 comme suit :

1) Champ neutronique Californium nue : les résultats sont présentés figure 4.26 a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,99. Le résultat obtenu est en accord avec le spectre attendu (noir) pour la partie basse énergie du domaine mais s'en éloigne dans la partie haute énergie. La méthode de modification du spectre "plat", décrite dans la partie précédente ne donne pas de résultats concluants (spectre divergent non affiché sur la figure). Lorsque nous choisissons le spectre donné par SPEC4 comme spectre de départ, le paramètre χ^2 atteint une valeur de 100, ce qui signifie que le problème de déconvolution traité de cette manière est "sur-déterminé", autrement dit le spectre de départ détermine totalement le spectre solution. Ceci explique que le spectre solution dans ce cas (rouge) est confondu avec le spectre déconvolué par SPEC4 (magenta), exception faite des canaux où SPEC4 affiche des valeurs négatives. Les performances de déconvolution pour cette problématique (SP2-1 avec Cf nue) sont médiocres globalement et cela peut s'expliquer par la faible statistique de comptage de ce compteur pour ce type de champ neutronique.
2) Champ neutronique Californium nue modérée avec une sphère d'eau lourde : les

résultats sont présentés figure 4.26 b). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,999. Le résultat obtenu est très éloigné du spectre attendu. La méthode de modification du spectre "plat", décrite dans la partie précédente ne donne pas non plus de résultats concluants (spectre divergent non affiché sur la figure). Lorsque le spectre donné par SPEC4 est choisi comme spectre de départ, nous observons le même phénomène que pour le cas 1). Les explications sont les mêmes car, la statistique de comptage (quelques dizaines de coups par canal) est également faible.

3) Champ neutronique AmBe avec un blindage de Pb de 1 mm d'épaisseur : les résultats sont présentés figure 4.27. Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant de converger vers un spectre solution stable vaut 0,9955. Le spectre solution s'approche de la référence dans la partie basse énergie et s'en éloigne dans la partie haute énergie. Lorsque le spectre donné par SPEC4 est choisi comme spectre de départ, nous observons le même phénomène que pour les cas 1) et 2).



(a) (b)

Fig. 4.26 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge comparés avec le spectre de référence ISO en noir : Californium nue (a) Californium modérée avec D_2O (b)

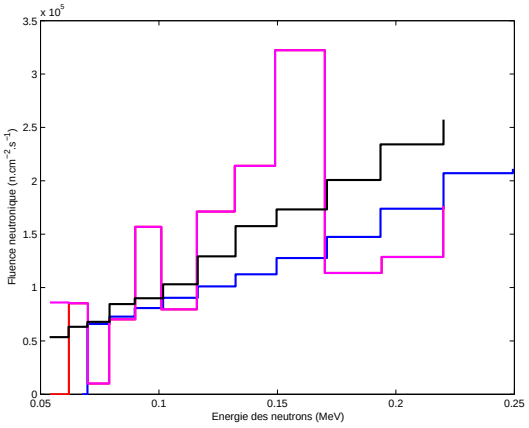


Fig. 4.27 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge comparés avec le spectre de référence ISO en noir : source AmBe

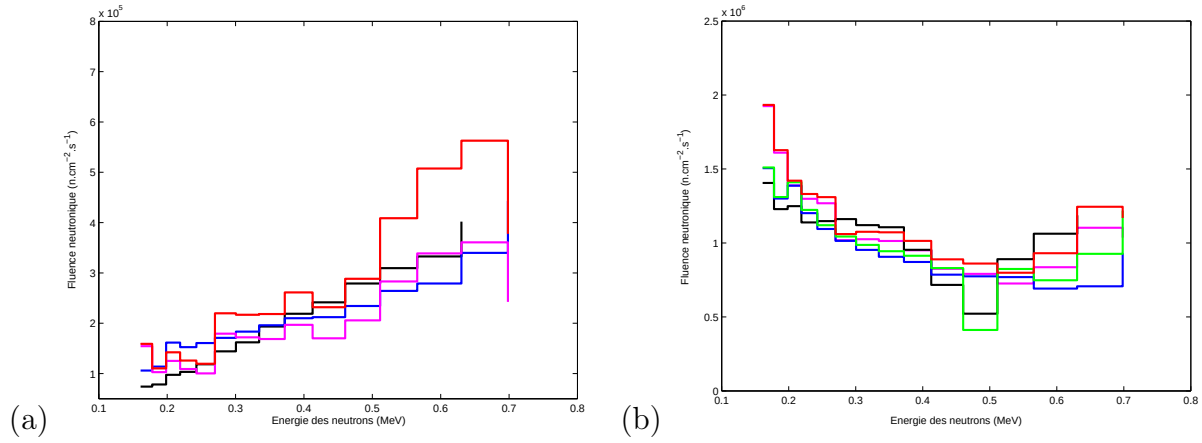
4.6.4.2 Détecteur SP2-4

Nous avons réalisé la déconvolution des données spectrales du compteur SP2-4 comme suit :

1) Champ neutronique Californium nue : les résultats sont présentés figure 4.28 a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,98. Le résultat obtenu est en accord avec le spectre attendu (noir) pour la partie basse énergie du domaine, mais s'en éloigne dans la partie haute énergie. Lorsque nous choisissons le spectre donné par SPEC4 comme spectre de départ, le paramètre χ^2 atteint une valeur de 0,978 pour la convergence. Nous constatons que le spectre ainsi obtenu surestime largement le spectre attendu tout en ayant la même forme. Nous pouvons émettre l'hypothèse que le spectre de départ ainsi choisi contient "trop d'informations" et ne permet de réaliser une déconvolution correcte.
2) Champ neutronique Californium modérée avec une sphère d'eau lourde : les résultats sont présentés figure 4.28 b). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,979. Le spectre résultat est relativement proche du spectre attendu mais ne restitue pas la résonance de l'oxygène 16 à environ 500 keV. Lorsque nous choisissons le spectre donné par SPEC4 comme spectre de départ (en rouge), la valeur du paramètre χ^2 permettant d'atteindre la convergence est de 0,95. Le spectre solution ainsi obtenu approche le spectre attendu (en noir) mais

ne restitue pas non plus la résonance de l'oxygène. Nous avons fait réalisé un test de déconvolution en utilisant un spectre de départ "plat" modifié (figure 4.30 (a)). Le spectre solution (en vert) restitue fidèlement la physionomie du spectre attendu, notamment pour la résonance de l'oxygène.

3) Champ neutronique AmBe avec un blindage de Pb de 5 mm d'épaisseur : les résultats sont présentés figure 4.29 a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,98. Le spectre résultat concorde avec le spectre attendu (en noir) pour la partie haute énergie du spectre mais s'en éloigne pour la partie basse énergie. En modifiant quelque peu le spectre de départ "plat" comme le montre la figure 4.30 (b), nous obtenons un spectre solution satisfaisant avec la même valeur du paramètre χ^2=0,98 (courbe en vert). Nous constatons que lorsque le choix du spectre par défaut se porte sur le spectre SPEC4, les résultats de la déconvolution ne sont pas concluants (spectre solution confondu avec le spectre déconvolué avec SPEC4).



(a) (b)

Fig. 4.28 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : Californium nue (a) Californium modérée avec D_2O (b)

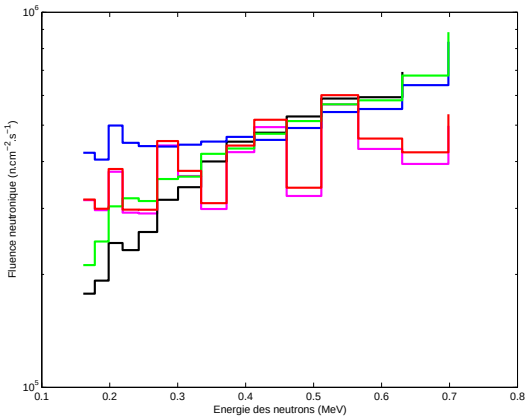
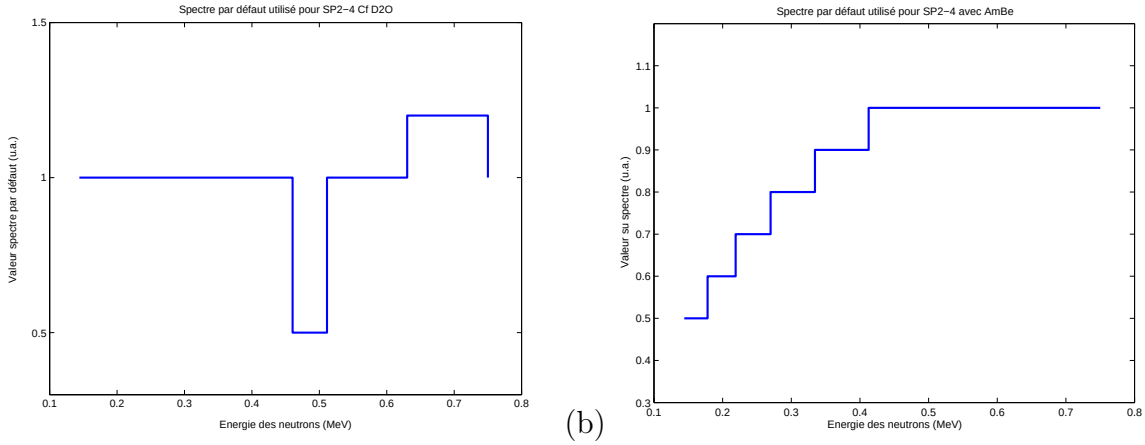


Fig. 4.29 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : source AmBe


Spectre par défaut utilisé pour SP2−4 Cf D2O
Valeur spectre par défaut (u.a.)
Energie des neutrons (MeV)
Spectre par défaut utilisé pour SP2−4 avec AmBe
Valeur su spectre (u.a.)
Energie des neutrons (MeV)

(a) (b)

Fig. 4.30 – Spectres plats “modifiés” selon des critères de forme et en utilisant des arguments tirés de la physique des neutrons : pour la californium modérée par D_2O (a), pour AmBe (b)

4.6.4.3 Détecteur SP2-10

Nous avons réalisé la déconvolution des données spectrales du SP2-10 comme suit :

1) Champ neutronique Californium nue : les résultats sont présentés figure 4.31 a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre “plat” (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,92. Le spectre solution ainsi obtenu est en très bon accord avec les spectre de référence (en noir). Lorsque nous choisissons le spectre déconvolué par SPEC4 comme spectre de départ pour MAXED (en rouge), le spectre solution obtenu coïncide qua-

siment avec SPEC4 (magenta). Cela signifie que la déconvolution faite ainsi n'est pas performante.

2) Champ neutronique Californium modérée avec une sphère d'eau lourde : les résultats sont présentés figure 4.31 b). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" modifié de la figure 4.33 (a), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,92. Cette solution (en vert) est en très bon acoord avec le spectre attendu, car elle restitue notamment la seconde résonance de l'oxygène 16 à environ 1 MeV.

3) Champ neutronique AmBe avec un blindage de Pb de 5 mm d'épaisseur : les résultats sont présentés figure 4.32 (a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" modifié de la figure 4.33 (b), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,955. Cette solution (en vert) est satisfaisante puisqu'elle est en excellent accord avec le spectre référence (en noir). Par contre, lorsque nous choisissons le spectre déconvolué par SPEC4 comme spectre de départ pour MAXED, nous nous apercevons que la solution surestime largement le spectre attendu. À ce stade de l'étude, nous décidons d'abandonner cette méthode d'utilisation de SPEC4 pour améliorer le spectre par défaut, car elle ne donne pas de résultats satisfaisants pour les trois détecteurs SP2-1, SP2-4 et SP2-10.

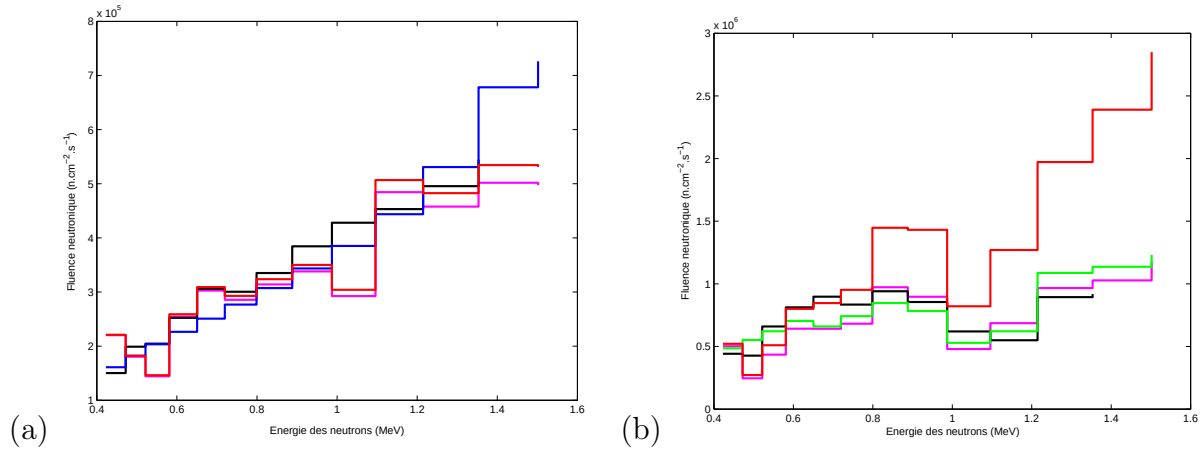


Fig. 4.31 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : Californium nue (a) Californium modérée avec D_2O (b)

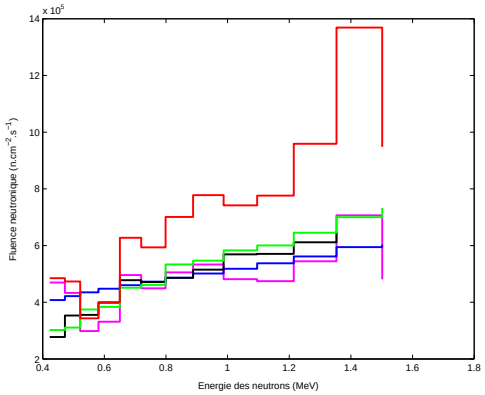


Fig. 4.32 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : source AmBe

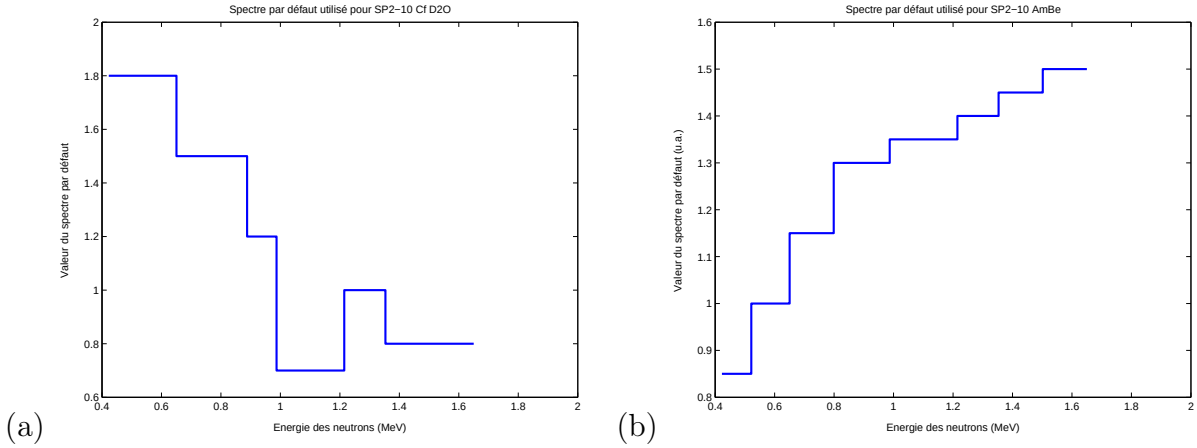

Spectre par défaut utilisé pour SP2−10 Cf D2O
Valeur du spectre par défaut
Energie des neutrons (MeV)
(a)
Spectre par défaut utilisé pour SP2−10 AmBe
Valeur du spectre par défaut (u.a.)
Energie des neutrons (MeV)
(b)

Fig. 4.33 – Spectres plats “modifiés” selon des critères de forme et en utilisant des arguments tirés de la physique des neutrons : pour la source de californium modérée par D_2O (a), pour AmBe (b)

4.6.4.4 Détecteur SP6

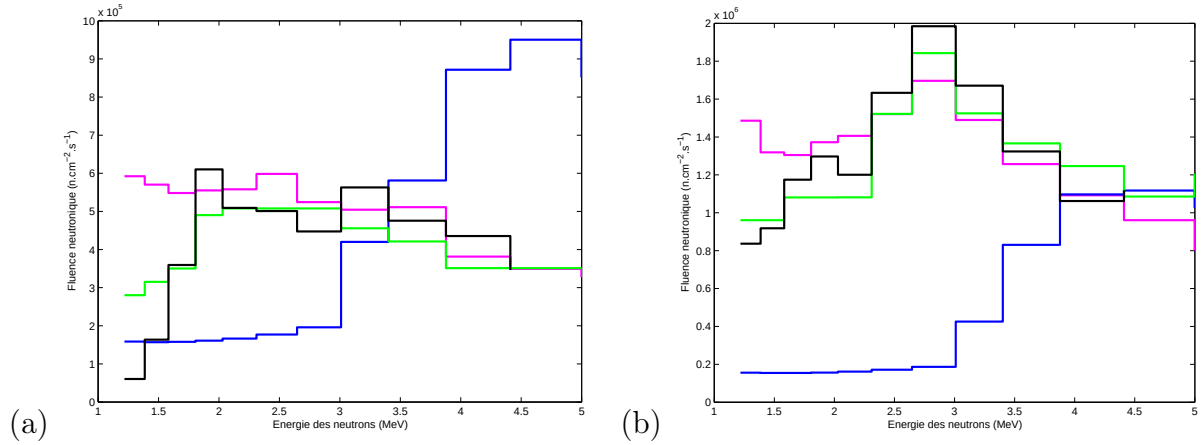
Nous avons réalisé la déconvolution des données spectrales du compteur SP6 comme suit :

1) Champ neutronique Californium nue : les résultats sont présentés figure 4.34 a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre “plat” (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d’obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,992. Le spectre résultat ainsi obtenu n’est pas en accord avec le spectre de référence (en noir). Si nous utilisons le spectre “plat” modifié de la figure 4.36 (a), nous constatons

que le spectre solution (en vert) concorde mieux avec le spectre attendu hormis les deux premiers canaux d'énergie.

2) Champ neutronique Californium modérée avec une sphère d'eau lourde : les résultats sont présentés figure 4.34 (b). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,984. Comme dans le cas 1), le spectre ainsi obtenu n'est pas en accord avec le spectre attendu. En utilisant le spectre "plat" modifié de la figure 4.36 (b), le résultat de la déconvolution (courbe verte) est amélioré (avec un paramètre χ^2 valant 0,992).

3) Champ neutronique AmBe avec un blindage de Pb de 1 mm d'épaisseur : les résultats sont présentés figure 4.35 (a). Dans le cas où le spectre de départ choisi est le spectre "plat" (en bleu), le paramètre χ^2 permettant d'obtenir la convergence vers un spectre solution stable vaut 0,999. Même remarque que dans le cas 1) et 2) concernant la pertinance de la déconvolution avec le spectre "plat". En utilisant le spectre "plat" modifié de la figure 4.37 (a), le résultat de la déconvolution (courbe verte) est amélioré (avec un paramètre χ^2 valant 0,992).



(a) (b)

Fig. 4.34 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : Californium nue (a) Californium modérée avec D_2O (b)

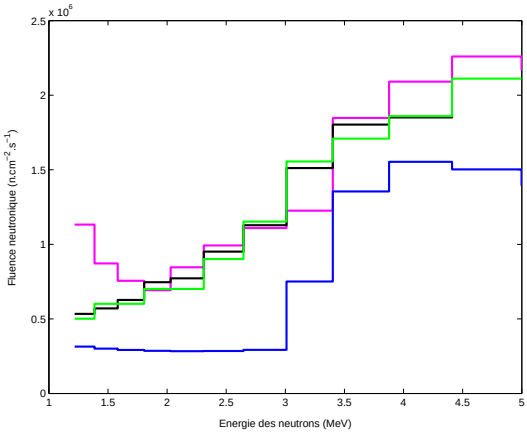


Fig. 4.35 – Spectres déconvolués avec SPEC4 en magenta, avec MAXED (spectre plat) en bleu, avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) en rouge, avec MAXED (spectre plat modifié) en vert comparés avec le spectre de référence ISO en noir : source AmBe

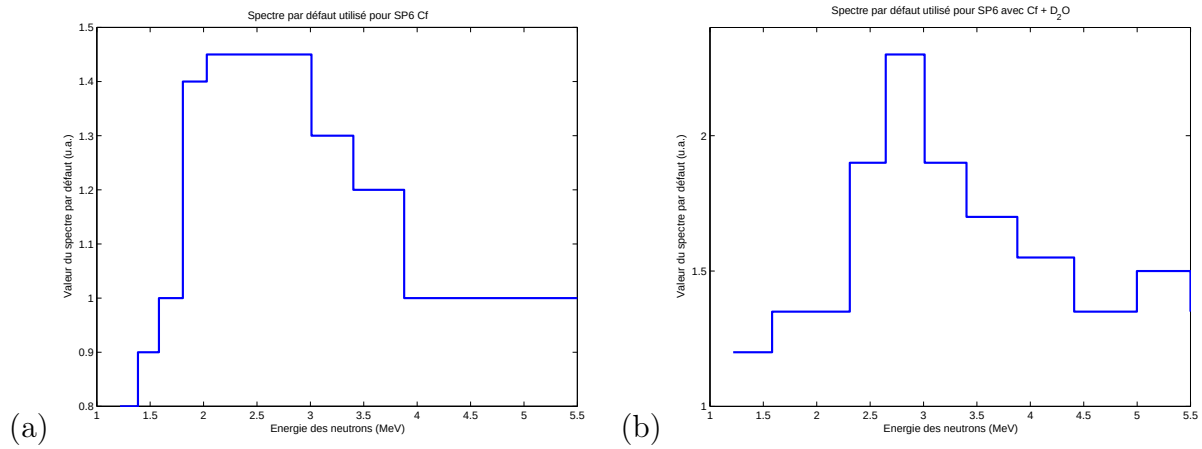

Spectre par défaut utilisé pour SP6 Cf
Valeur du spectre par défaut (u.a.)
Energie des neutrons (MeV)
(a)
Spectre par défaut utilisé pour SP6 avec Cf + D2O
Valeur du spectre par défaut (u.a.)
Energie des neutrons (MeV)
(b)

Fig. 4.36 – Spectres plats "modifiés" selon des critères de forme et en utilisant des arguments tirés de la physique des neutrons : pour la californium (a), pour la californium modérée avec D_2O (b)

4.6.5 Bilan

L'analyse comparative des performances de déconvolution de SPEC4 et de MAXED avec les nouvelles pistes définies dans les parties 4.6.3.1. et 4.6.3.2., nous permet de tirer les enseignements suivants :

- quel que soit le code de déconvolution utilisé, la statistique des mesures expérimentales est un paramètre primordial à prendre en compte. Le processus de déconvolution est très sensible à la propagation des incertitudes et peut donner des résultats

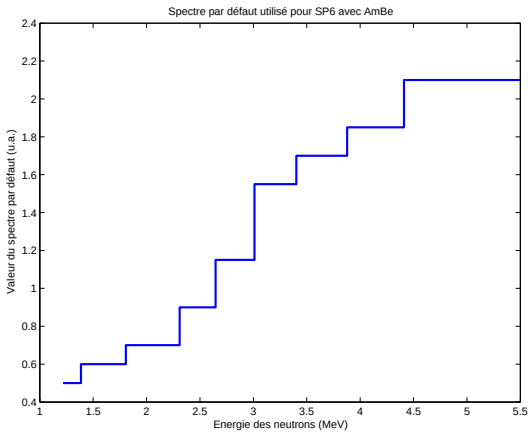


Fig. 4.37 – Spectres plats "modifiés" selon des critères de forme et en utilisant des arguments tirés de la physique des neutrons : pour source AmBe

erronés si ces dernières ne sont pas appréhendées de façon correcte.

- De façon générale, plus la statistique des mesures est mauvaise, plus le processus de déconvolution se révèle ardu. C'est ce que nous constatons lors de l'analyse des données spectrales du détecteur SP2-1. Ce dernier ayant une pression moindre par rapport aux autres compteurs, son efficacité de détection et donc sa statistique de comptage sont faibles.
- Pour les autres détecteurs, le code MAXED permet globalement d'améliorer les résultats de la déconvolution par rapport au code SPEC4. Néanmoins, nous avons vu que l'utilisation de MAXED doit se faire au cas par cas et qu'il n'est pas aisé d'obtenir rapidement le bon paramètre χ^2 permettant la convergence des itérations vers une solution physique et stable. Nous avons montré que le choix du spectre de départ (ou spectre par défaut dans le jargon de MAXED) est primordial pour mener à bien une déconvolution performante.
- L'ensemble des résultats pour les détecteurs SP2-4, SP2-10 montrent que l'utilisation des données spectrales de SPEC4 en tant que spectre de départ pour MAXED, n'est pas appropriée pour la problématique de déconvolution étudiée.
- L'apport d'éléments de physique neutronique permet d'améliorer la façon de construire un "bon" spectre de départ. En modifiant de façon réfléchie le spectre "plat", nous arrivons à obtenir des spectres solutions plus satisfaisants et réalistes. Nous avons pu voir que certains cas, le spectre "plat" suffit et qu'il n'est pas alors nécessaire de recourir à cette méthode.

Conclusion générale

L'ensemble spectrométrique ROSPEC est un instrument complexe et l'étude de son comportement a nécessité la mise en place de méthodes basées sur la simulation numérique par méthode Monte Carlo. L'évaluation de ses performances en champs neutroniques de référence a été réalisée dans le cadre de mesures d'intercomparaison effectuées au sein du Laboratoire de Dosimétrie et de Métrologie des Neutrons. Nous avons entrepris de quantifier l'effet de la rotation de l'appareil *via* la simulation. Nous avons montré que l'influence de la rotation sur les six compteurs en terme de fluence neutronique était peu significative, quelle que soit la source neutronique employée. Ce résultat est satisfaisant car il garantit que le mode rotatif peut être utilisé par l'expérimentateur sans crainte de voir la réponse des compteurs altérée.

La proximité des détecteurs au sein de l'appareil ROSPEC est un facteur important à appréhender. Nous avons choisi d'évaluer les perturbations mutuelles pouvant exister entre les six détecteurs. Les influences en terme de diffusion de neutrons entre eux se révèlent non négligeables. Néanmoins, des analyses plus détailées, réalisées compteur par compteur, nous ont permis d'affirmer que seule la réponse du compteur sensible aux neutrons thermiques subissait une pertubation allant jusqu'à 40% du débit de fluence neutronique total. L'interprétation des mesures de ce détecteur est très délicate car il subit de façon importante l'influence de la proximité du compteur SP6. Le fonctionnement des autres compteurs n'est pas perturbé quant à lui. Cela s'explique par le choix de disposition judicieux de ces compteurs proportionnels.

Cette partie de l'étude a permis de montrer que le comportement général de l'appareil est satisfaisant malgré sa complexité (rotation, aspect "multi-détecteurs"), les réponses des compteurs restant relativement peu perturbées hormis le compteur sensible aux très basses énergies de neutrons.

Nous avons montré que le fonctionnement interne des compteurs proportionnels se différencie du fonctionnement du compteur idéal car il est perturbé par les phénomènes d'effet de paroi, l'effet de l'inhomogénéité de la multiplication gazeuse au sein du milieu détecteur et du phénomène de *downscattering*. La redéfinition des fonctions de réponse des quatre compteurs hydrogénés (SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6) a été réalisée en prenant en compte toutes ces perturbations. L'effet de paroi a été traité en montrant la corrélation entre les fonctions de réponse prédite par la procédure de Snidow et calculée par simulation MCNPX. Le coefficient de multiplication gazeuse tel qu'il est défini par la théorie de Townsend a été déterminé comme suit : les valeurs de champ électrique le long de l'anode du compteur, calculées en utilisant la méhode des éléments finis, ont servi à la définition d'un zonage approprié dans MCNPX. La fonction de réponse corrigée ainsi calculée est en très bonne corrélation avec les mesures expérimentales faites par ailleurs. Nous avons donc pu mettre en place une méthode complète pour prédire de façon précise les fonctions de réponse d'un compteur proportionnel gazeux sphérique à des faisceaux de neutrons monocinétiques.

Le calcul de fonctions de réponses a permis la construction de matrices de réponse des quatre compteurs hydrogénés. Elles sont en effet nécessaires pour réaliser la déconvolution spectrométrique de leurs données mesurées. Le code de déconvolution installé par défaut sur l'appareil, SPEC4, ayant montré quelques déficiences d'ordre mathématique, nous avons fait appel à un code alternatif MAXED dont l'avantage majeur est de toujours donner des fluences neutroniques positives. Nous avons procédé à des analyses comparatives des deux codes. Elles ont abouti à l'optimisation de l'utilisation du code MAXED, *via* l'amélioration des matrices de réponse et l'adaptation par l'utilisateur des informations *a priori* dans le processus de déconvolution. Nous avons montré de cette façon que les performances du code MAXED sont supérieures à celles de SPEC4. Toutefois, le code MAXED ne peut être utilisé comme "une boîte noire" car l'expérimentateur doit avoir recours à des considérations de physique des neutrons pour entrer des informations *a priori* adaptées au problème de déconvolution traité.

Perspectives

Les travaux présentés ouvrent la voie à des investigations futures dans l'étude de l'appareil ROSPEC. Elles concernent notamment la détermination des fonctions de réponse des compteurs à hélium 3. Le modes de détection des neutrons qui y est associé (réaction ^{3}He(n,p)T), est perturbé par divers phénomènes (effet de paroi en particulier), dont il faudra tenir compte. La prise en compte des effets de multiplication gazeuse dans le détecteur SP6 devra également être faite, *via* le calcul des valeurs du champ électrique.

La collecte des signaux par les six compteurs composant le ROSPEC subit également la perturbation des photons γ, en particulier dans les champs neutroniques mixtes à forte composante γ. Le problème a été résolu dans un premier temps en réduisant la plage d'énergie des protons de recul, ce qui provoque inévitablement des pertes d'informations. Toutefois, il existe plusieurs méthodes plus complètes et plus rigoureuses pour assurer une discrimination des signaux neutrons/photons γ. Nous pouvons citer la discrimination digitale réalisée avec un compteur proportionnel à protons de recul contenant du méthane [138].

En ce qui concerne la déconvolution spectrométrique, l'amélioration de la prise en main du code MAXED consisterait à contrôler de manière plus précise les paramètres statistiques (valeur du χ^2, notamment) et à mettre au point une démarche automatisée de détermination de l'incertitude liée au spectre solution trouvé. Une autre piste d'amélioration est l'augmentation du nombre de groupes d'énergie des spectres neutrons déconvolués par l'intermédiaire de matrices de réponse encore plus précises et des mesures expérimentales jouissant d'une statistique de comptage suffisamment importante.

Bibliographie

[1] A.J. Peurrung. Recent developments in neutron detection. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 443 :400–415, 2000.

[2] L.C. Johnson, C.W. Barnes, A. Krasilnikov, F.B. Marcus, and T. Nishitani. Neutron diagnostics for ITER. *Review of Scientific Instruments*, 68 :569–572, 1997.

[3] T. Elevant, B. Wolle, and A. Weller. Proposed neutron diagnostics for Wendelstein 7-X stellarator. *Review of Scientific Instruments*, 70 :1185–1189, 1999.

[4] J. Salmon. *Théorie cinétique des neutrons rapides.* Bibliothèque des sciences et techniques nucléaires, 1961.

[5] G.F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement (third edition).* John Wiley and Sons, 2000.

[6] J.L. Gammel. *Fast mention physics Part II.* J.B. Marion and J.L. Fowler, eds, 1973.

[7] P. Reuss. *Précis de neutronique.* EDP Sciences, 2003.

[8] P.A. Balo R.C. Martin, J.B. Knaeur. Production, distribution and applications of californium-252 neutron source. *Applied Radiation and Isotopes*, 53 :785–792, 2000.

[9] W. Mannhart. *Evaluation of the ^{252}Cf Fission Neutron Spectrum between 0 MeV and 20 MeV.* PTB report, 1986.

[10] W. Mannhart. *Status of the ^{252}Cf Fission Neutron Spectrum Evaluation with Regard to Recent Experiments.* Physics of Neutron Emission in Fission, H.D. Lemmel, Vienna, IAEA, 1989.

[11] Yan N. Gordeev Yevgeni A. Karelin and al. Californium-252 neutron sources. *Applied Radiation Isotopes*, 48 :1563–1566, 1997.

[12] J.B. Hunt H. Kluge, W. Rasp. An intercomparison of the D_20-moderated ^{252}cf reference neutron sources at PTB and NPL. *Radiation Protection Dosimetry*, 11 :61–63, 1985.

[13] Dermott Cullen. *POINT 2003 : Temperature Dependent ENDF/B. VI, Realease 8 Cross Section Library.* Report UCRL-ID-127776, Rev. 2, 2003.

[14] Y. Ruguma et al. N. Soppera, H. Henriksso. *JANIS version 2.1.* AEN, 2005.

[15] R.A. Neff M.E. Anderson. Neutron energy spectra of different size 239pu–be(alpha,n) sources. *Nuclear Instruments and Methods*, 99 :231–235, 1972.

[16] Ralph H. Thomas H. Wade-Patterson. *Accelerator Health Physics.* Academic Press, New York and London, 1973.

[17] A. Wattenberg. *Photo-Neutron Sources.* National Research Council Preliminary Report No. 6, 1949.

[18] B. Feld. *The Neutron, in Experimental Nuclear Physics vol. III.* Ed. E. Segrè (John Wiley, New York), p. 368, 1953.

[19] W.J. Price. *Nuclear Radiation Detection, 2nd ed., Chap. 5.* McGraw-Hill, New York, 1964.

[20] J. Sharpe. *Nuclear Radiation Detection, 2nd ed.* Methuen and Co., London, 1964.

[21] E.W. Emery. *Geiger-Muller and Proportional Counters in Radiation Dosimetry.* F.H Attix and W.C. Roesch eds. Acdemic Press, New York, 1966.

[22] D.H. Wilkinson. *Ionization Chambers and Counters.* Cambridge University Press, London, 1950.

[23] D.H. Wilkinson. The Geiger discharge revisited Part I. The charge generated. *Nuclear Instruments and Methods A*, 321 :195–210, 1992.

[24] D.H. Wilkinson. The Geiger discharge revisited Part II. Propagation. *Nuclear Instruments and Methods A*, 383 :516–522, 1996.

[25] D.H. Wilkinson. The Geiger discharge revisited part iii. Convergence. *Nuclear Instruments and Methods A*, 383 :516–522, 1992.

[26] H. Kallmann and M. Furst. *The basic processes occuring in the liquid scintillator. In Liquid scintillation counting. pages 3-22.* Northwestern University, 1957.

[27] J. B. Birks. *The theory and practice of scintillation counting.* Pergamon Press, London, 1964.

[28] R.L. Bramblett, R.I. Ewing, and T.W. Bonner. A new type of neutron spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods*, 9 :1–12, 1960.

[29] A.V. Alevra D.J. Thomas. Bonner sphere spectrometers - a critical review. *Nuclear Instruments and Methods in Physics A*, 476 :12–20, 2002.

[30] J.C. Liu, F. Hajnal, C.S. Sims, and J. Kuiper. Neutron Spectral Measurements at ORNL. *Radiation Protection Dosimetry*, 30 :169–178, 1990.

[31] M. Bricka et al. In *Proceedings of a Symposium on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes, IAEA, Vienna*, page 279, 1973.

[32] A.V. Alevra, M. Cosack, J.B. Hunt, D.J. Thomas, and H. Schraube. Experimental Determination of the Response of Four Bonner Sphere sets to Monoenergetic Neutrons. *Radiation Protection Dosimetry*, 23 :293–296, 1988.

[33] P. M. Thomas, K. G. Harrison, and M. C. Scott. A multisphere neutron spectrometer using a central 3he detector. *Nuclear Instruments and Methods*, 224 :225–232, 1984.

[34] A.V. Alevra, M. Cosack, J.B. Hunt, D.J. Thomas, and H. Schraube. Experimental Determination of the Response of Four Bonner Sphere Sets to Monoenergetic Neutrons (ii). *Radiation Protection Dosimetry*, 40 :91–102, 1992.

[35] D.J. Thomas, A.V. Alevra, J.B. Hunt, and H. Schraube. Experimental Determination of the Response of Four Bonner Sphere Sets to Thermal Neutrons. *Radiation Protection Dosimetry*, 54 :25–31, 1994.

[36] Yoshitomo Uwamino, Takashi Nakamura, and Akihisa Hara. Two types of multi-moderator neutron spectrometers : Gamma-ray insensitive type and high-efficiency type. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 239 :299–309, 1985.

[37] A.T.G. Ferguson. *Fast Neutron Physics, Part I.* Eds. J.B. Marion, J.F. Fowler, Interscience, New York, 1960.

[38] N. Hejira. *Application à la radioprotection de la spectrométrie des neutrons par compteurs proportionnels à protons de recul.* PhD thesis, Faculté de Sciences, Université Paul Sabatier de Toulouse, July 1987.

[39] H. Ashkin H.A. Bethe. *Experimental nuclear physics, Part I.* John Wiley and sons, 1953.

[40] E. Nasser. *Fundamentals of gaseous ionization and plasma electronics*. John Wiley, Interscience, New York, 1971.

[41] R.J. Webster J.B. Parker, P.H. White. The interpretation of recoil proton spectra. *Nuclear Instruments and Methods*, 23 :61–68, 1963.

[42] B.D. Ramsey H. Sakurai. Dependance of energy resolution of anode diameter in Xenon proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Reasearch A*, 313 :155–160, 1992.

[43] J. Redfearn P.W. Benjamin, C.D. Kemshall. A high resolution spherical proportional counter. *Nuclear Instruments and Methods*, 59 :77–85, 1968.

[44] G. C. Hanna, D. H. W. Kirkwood, and B. Pontecorvo. High multiplication proportional counters for energy measurements. *Phys. Rev.*, 75(6) :985–986, Mar 1949.

[45] P.W. Benjamin, C.D. Kemshall, and A. Brickstock. The Analysis of Proton Recoil Spectra. Technical Report AWRE Report No. 09/68, United Kingdom Atomic Energy Authority, 1968.

[46] *Monte-Carlo N-Particle Transport Code System Manual*. RSICC, Los Alamos Laboratory, 2001.

[47] S. Agostinelli et al. GEANT 4 - a simulation tool. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 506 :250–303, 2003.

[48] J.P. Both, H. Derriennic, B. Morillon, and J.C. Nimal. In *Proceedings of the 8th International Conference on Radiation Shielding (ICRS), Arlington, TX, USA*, page 373, 1994.

[49] J.F. Breismeister (editor). *MCNP - A general Monte-Carlo N-Particle transport code, version 4C*. Los Alamos National Laboratory (report LA-13709-M), 2000.

[50] L.S. Waters. *MCNPX - User's manual, version 2.4.0*. Los Alamos National Laboratory report LA-CP-02-408, 2002.

[51] P.J. Bunge H. Ing, W.G. Cross. Spectrometry for radiation protection at Chalk River nuclear laboratories. *Radiation Protection Dosimetry*, 10 :137–145, 1985.

[52] H. Ing, T. Clifford, T. McLean, W. Webb, T. Cousins, and J. Dhermain. Rospec - A Simple Reliable High Resolution Neutron Spectrometer. *Radiation Protection Dosimetry*, 70 :273–278, 1997.

[53] W. Rosenstock, T. Köble, G. Kruziniski, and G. Jaunich. Calibration of a neutron spectrometer in the energy range 144 keV to 14.8 MeV with ISO energies. *Radiation Protection Dosimetry*, 70 :299–303, 1997.

[54] R.T. Faught J.C. Nunes. Commissioning of a proton-recoil spectrometer. *Radiation Protection Dosimetry*, 87 :251–260, 2000.

[55] L. Romero R. Devine. Evaluation of spectrum measurement devices for operational use. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 476 :416–422, 2002.

[56] C. Itié, H. Muller, B. Asselineau, R. Médioni, P. Crovisier, P. Valier-Bradier, J.E. Groetz, and J. Piot. Mesures de spectrométrie et de dosimétrie neutron aux postes de travail pour l'étalonnage des dosimètres individuels PGP-DIN. *Radioprotection*, 37 :443–455, 2002.

[57] ARIES. *Manuel d'instructions du spectromètre rotatif ROSPEC version 12.* ARIES, 2001.

[58] P.C. Agrawal B.D. Ramsey. Quench gases for xenon- (and krypton-) filled proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods A*, 273 :326–330, 1988.

[59] B.D. Ramsey P.C. Agrawal. Use of propane as a quench gas in argon-filled proportional counters and comparison with other quench gases. *Nuclear Instruments and Methods A*, 273 :331–337, 1988.

[60] J. Wittstock K. Knauf. *Neutron Spectrometry with Proton Recoil Proportional Counters.* PTB report, PTB-FMRB-114, Braunschweig, 1987.

[61] P.W. Benjamin and al. *The Analysis of Recoil Proton Spectra.* AWRE 09/68 report, 1968.

[62] J. Tagziria. *A USER's Guide for the NPL 3He Neutron Spectrometry System.* NPL report, 1993.

[63] Bubble Technology Industries. *ROSPEC calibration certificate S/N 96001.* BTI, Chalk River, 2001.

[64] C.D. Kemshall. *The use of spherical proportional counters for measurements.* AWRE Report, 1973.

[65] W.D. Allen and A.T.G. Ferguson. The Measurement of Fast Neutron Flux over Neutron Energy Range 0.03 MeV to 3.0 MeV. *Proc. Phys. Soc. (London)*, 70A :639–653, 1957.

[66] N. Evans I.R. Brearley, A. Bore and al. Some Aspects of The Use of Proton Recoil Proportional Counters for Neutron Spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods*, 192 :439–446, 1982.

[67] International Organization for Standardization. *Reference neutron radiations : Calibration fundamentals related to the basic Quantities characterizing the radiation field*. ISO 8529-2, Geneva, 2000.

[68] H. Strzelczyk. *Experimentelle Einrichtungen für Kalibrierungen am Dosimetriemessplatz der Gruppe 6.5 Neutronendosimetrie der Physikalisch-Technischen Bundesansalt*. PTB, Braunschweig, 1986.

[69] R.B. Schwartz and C.M. Eisenhauer. Test of a neutron spectrometer in NIST standard fields. *Radiation Protection Dosimetry*, 55 :99–105, 1994.

[70] A.D. Carlson, W.P. Poenitz, G.M. Hale, R.W. Peele, and D.C. Dodder. *The ENDF/B-VI Neutron Cross Section Measurement Standards*. National Institute of Standards and Technology NISTIR 5177, 1993.

[71] W.G. Cross H. Ing. Spectral and Dosimetric Characteristics of a D_2O-moderated ^{252}Cf Calibration Facility. *Health Phys.*, 46 :97–106, 1984.

[72] J.C. McDonald N.E. Hertel. Calculated Dosimetric Quantities for D_2O-Moderated ^{252}Cf Sources. *Radiation Protection Dosimetry*, 32 (4) :233–244, 1990.

[73] P. Crovisier, B. Asselineau, G. Pelcot, L. Van-Ryckeghem, A. Cadiou, H. Truffert, J.E. Groetz, and M. Benmosbah. French comparison exercise with the rotating neutron spectrometer, ROSPEC. *Radiation Protection Dosimetry*, 115 :324–328, 2005.

[74] L. Van-Ryckeghem. *Protocole de mesures pour l'exercice de type intercomparaison avec les spectromètres rotatifs (ROSPEC) au laboratoire associé 2.55*. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, 2003.

[75] International Organization for Standardization. *Reference neutron radiations : Calibration of area and personal dosimeters and Determination of their response as a function of Neutron energy and angle of incidence*. ISO 8529-3, Geneva, 2000.

[76] International Commission on Radiation Units. *Quantities and Units in Radiation Protection*. ICRU Report 51, Bethesda (USA), 1993.

[77] International Organization for Standardization. *Reference neutron radiations : Characteristics and Methods of production*. ISO 8529-1, Geneva, 2000.

[78] International Atomic Energy Agency. *Compendium of Neutron Spectra and Detector Responses for Radiation Protection Purposes*. IAEA, Supplement to Technical Reports Series No. 318, Vienna, 2001.

[79] W. Hansen H. Tagziria. Neutron spectrometry in mixed fields : Proportional counter spectrometers. *Radiation Protection Dosimetry*, 107 :73–93, 2003.

[80] H. Sipilä M.-L. Järvinen. Wall effect and detection. limit of the proportional counter. *Nucl. Sci. NS-31*, 356, 1984.

[81] B. Grosswendt I.K. Bronic. Ionization yield formation in argon-isobutane mixtures as measured by a proportional-counter method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 117 :5–17, 1996.

[82] H. Genz. Single electron detection in proportional gas counters. *Nuclear Instruments and Methods*, 112 :83–90, 1973.

[83] J. Byrne. Statistics of electron avalanches in the proportional counter. *Nuclear Instruments and Methods*, 74 :291–296, 1969.

[84] G.D. Alkhazov. Statistics of electron avalanches and ultimate resolution of proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods*, 89 :155–165, 1989.

[85] B. Breyer. Pulse height distribution in low energy proportional counter measurements. *Nuclear Instruments and Methods*, 112 :91–93, 1973.

[86] B.A. Cooke M.W. Charles. Proportional counter resolution. *Nuclear Instruments and Methods*, 61 :31–36, 1968.

[87] J. Byrne F. Shaikh. The energy dependence of proportional counter pulse-height resolution in the range 5-23 kev. *Nuclear Instruments and Methods*, 88 :317–319, 1970.

[88] R.I. Sara A. Williams. Parameters affecting the resolution of a proportional counter. *Int. Journal of Applied Radiation Isotopes*, 13 :229–238, 1962.

[89] A. Ziegler W. Hink, A.N. Sheit. Eine einfache apparatur zur gasversorgung von durchflussproportionalzählrohren bei beliebigem betriebsdruck. *Nuclear Instruments and Methods*, 87 :137–140, 1970.

[90] K. Knauf K. Weise, M. Weyrauch. Neutron response of a spherical proton recoil proportional counter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 309 :287 – 293, 1991.

[91] Malcolm C. Scott John S. Petler. The effect of charged particles produced in detector walls on the use of proton recoil proportional counters for neutron spectrometry. *Nuclear Instruments and methods in Physics Research*, 228 :425–431, 1985.

[92] H.D. Warren N.L. Snidow. Wall effects corrections in proportional counter spectrometers. *Nuclear Instruments and Methods*, 51 :109–116, 1967.

[93] T.J. Yule E.F. Bennett. Response functions for proton-recoil proportional counter spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods*, 98 :393–412, 1971.

[94] J.P. Biersack J.F. Ziegler. *SRIM code*. 2003.

[95] P.V. Vavilov. Ionisation losses of high energy heavy particles. *Soviet Physics JETP*, 5 :749–, 1957.

[96] J. Barthe P. Kliauga, A.J. Waker. Design of tissue-equivalent proportional counters. *Radiation Protection Dosimetry*, 6 :309–322, 1995.

[97] J.S. Townsend. *Electrons in gases*. Hutchinson, London, 1947.

[98] Raymond Gold and Edgar F. Bennett. Electron multiplication process in proportional counters. *Phys. Rev.*, 147(1) :201–213, Jul 1966.

[99] W. Diethorn. *A methane proportional counter system for natural radiocarbon measurements*. PhD thesis, Carnegie Inst. of Tech., Pittsburgh, 1956.

[100] W. Bambynek. On selected problems in the field of proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods*, 112 :103–110, 1973.

[101] P.G. Campion. Some comments on the operation of proportional counters. In H.G. Ebert, editor, *In Proceedings Third Symp. on Microdosimetry*. CEC, Brussels, 1972.

[102] K. Knauf, M. Weyrauch, F. Simon, and N. Kaldune. SPHERE - a program package for calculating the neutron response of spherical proton recoil proportional counters. Technical Report PTB-6.42-98-1 report, Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Germany, 1998.

[103] R. Babut and V. Gressier. Monte Carlo simulation of the response energy distribution of proton recoil proportional counters. *Proceedings of Science*, FNDA 2006 - 025, 2006.

[104] COMSOL. *COMSOL Multiphysics version 3.3*. COMSOL AB, 2006.

[105] J.V. Sandberg J.T. Routti. Unfolding activation and multisphere detector data. *Radiation Protection Dosimetry*, 10 :103–110, 1984.

[106] G. Arfken. *Mathematical Methods for Physicists, 3rd edition*. Academic Press, Orlondo, 1985.

[107] B.R. Martin. *Statistics for Physicists*. Academic Press, London, New York, 1971.

[108] H. Jeffreys. *Theory of Probability*. Clarendon Press, Oxford, 1967.

[109] F.K. Perey. Iaea technical committee meeting. Technical Report Report IAEA TECDOC-221, Oak Ridge National Laboratory, IAEA, 1979.

[110] J.W.M. Dekker J.B. Dragt and al. Methods of adjustment and error evaluation of neutron capture cross sections : application to fission product nuclides. *Nucl. Sci. Eng.*, 62 :117–129, 1977.

[111] M.Matzke. Unfolding of particle spectra. In *International Conference : Neutrons in Research and Industry, Crete, Greece*, 1997.

[112] M. Matzke. Propagation of Uncertainties in Unfolding Procedures. *Nuclear Instruments and Methods A*, 476 :230–241, 2002.

[113] K. Weise M. Matzke. Neutron Spectrum Unfolding by the Monte Carlo Method. *Nuclear Instruments and Methods A*, 234 :324–330, 1985.

[114] B.R.L. Siebert A.V. Alevra and al. Unfolding bonner-sphere data : An european intercomparison of computer codes. Technical Report PTB-7.22-90-1, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1990.

[115] F.G. Perey. Least-squares dosimetry unfolding : the program stay'sl. Technical Report ORNL/TM-6062, Oak Ridge National Laboratory, 1976.

[116] F.W. Stallmann. Lsl-m2 : A computer program for least-squares logarithmic adjustment of neutron spectra. Technical Report NUREG/CR-4349, ORNL/TM-9933, Oak Ridge National Labortory, 1986.

[117] J.J. Wagschal R.E. Maerker, B.L. Broadhead. Theory of a New Unfolding Procedure in Pressurized Water Reactor Pressure Vessel Dosimetry and Development of an Associated Benchmark Data Base. *Nucl. Sci. Eng.*, 91 :13–170, 1986.

[118] Kocherov. Neutron metrology file nmf-90. Technical Report IAEA-NDS-171, International Atomic Energy Agency, 1996.

[119] J.V. Sandberg J.T. Routti. General Purpose Unfolding Program LOUHI78 with Linear and Nonlinear Regulations. *Comput. Phys. Commun.*, 21 :119–144, 1980.

[120] J.D. Drischler W.R. Burrus. The ferdor unfolding code. Technical Report ORNL-4154, Oak Ridge National Laboratory, 1965.

[121] J. Weese. A reliable and fast method for the solution of Fredholm integral equations of the first kind based on Tikhonov regularization. *Comput. Phys. Commun.*, 69 :99–111, 1992.

[122] M. Matzke. Unfolding of pulse height spectra : The hepro program system. Technical Report PTB-N-19, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1994.

[123] ISO Guide. *Guide to expression of uncertainty in measurement.* International Organization for Standardization, Geneva, 1995.

[124] C.L. Dunford P.F. Rose. *ENDF-102.* Brookhaven National Laboratory, 1990.

[125] M. Tichy. The difbas program, description and users guide. Technical Report PTB-7.2-93-1, Physikalisch-Technische Bundesansalt, 1993.

[126] S. Berg W.N. McElroy and al. A computer-automated iterative method for neutron flux spectra determination by foil activation. Technical Report AFWL-TR-67-41, U.S. Air Force Weapons Laboratory, 1967.

[127] T.L. Johnson K.A. Lowry. Modification to iterative recursion unfolding algorithms and computer codes to fond more appropriate neutron spectra. Technical Report NRL-5340, Naval research Laboratory, 1984.

[128] S.N. Kraitor J.J. Doroshenko and al. New Methods for Measuring Neutron Spectra with Energy from 0.4 eV to 10 MeV by Track and Activation detectors. *Nuclear Technology*, 33 :296–304, 1977.

[129] F. Schmittroth. A Method for Data Evaluation with Lognormal Distributions. *Nucl. Sci. Eng.*, 72 :19–34, 1979.

[130] J. Skilling. *Maximum Entropy and Bayesian Methods.* Cambridge, 1988.

[131] P. Goldhagen M. Reginatto. Maxed, a computer code for the deconvolution multisphere neutron spectrometer data using the maximum entropy method. Technical Report EML-595, Environmental Measurements Laboratory, 1998.

[132] S. Drapatz R. Wilczek. A high accuracy algorithm for maximum entropy image restoration in the case of small data sets. *Astronomy and astrophysics (Astron. astrophys.)*, 142 :9–12, 1985.

[133] BTI. Manuel d'instructions du spectromètre neutron rotatif rospec. Technical Report Version 12, Bubble Technology Industries, ARIES, 2001.

[134] P. Crovisier M. Benmosbah, J.E. Groetz. A comprehensive study of a wide energy range proportional counter neutron spectrometer. In *Proceedings of science*, 2006.

[135] S. Neumann M. Reginatto, P. Goldhagen. Spectrum unfolding, sensitivity analysis and propagation of uncertainties with the maximum entropy deconvolution code MAXED. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 476 :242–246, 2002.

[136] T. Tsunoda S. Itoh. Neutron Spectra Unfolding with Maximum Entropy and Maximum Likelihood. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 26 :833–843, 1989.

[137] A.A. Spiridinov V.P. Zhigunov, T.B. Kostkina. On estimating distributions with the maximum entropy principle. *Nuclear Instruments and Methods A*, 280 :362–370, 1988.

[138] E.F. Bennett. Proportional Counter Proton-Recoil Spectrometer with Gamma Discrimination. *Review of Scientific Instruments*, 33(11) :1153–1160, 1962.